

令和 6 年 5 月 31 日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：19H02219

研究課題名(和文) 老化したアスファルトを水熱分解により若返らせる持続可能な再資源化技術の開発

研究課題名(英文) Sustainable recycling technology for rejuvenating aged bitumen by hydrothermal decomposition

研究代表者

加納 陽輔 (KANOU, Yousuke)

日本大学・生産工学部・教授

研究者番号：50451315

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究を通じて、水(高温高圧水)を用いたアスファルトの若返り技術の開発に取り組んだ。その結果、臨界点近傍の亜臨界水を溶媒とした場合、反応温度の上昇および反応時間の増加に伴いアスファルトの軽質化が進むこと、舗装用素材としてアスファルトの再利用を目的とした場合、350℃・15分の反応条件が適切であることを見出した。さらに、繰返し再生され老化・変質が進行したアスファルトに対しても、同条件の水熱分解によって新規のアスファルトと遜色のない品質に若返る可能性を確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本技術は、道路舗装の維持修繕工事に伴い年間約2,000万トン発生する再生資材の持続的利用ならびに高品質化を目指したものであり、「水と油」の関係性に着目した新たなアプローチによる研究要素を含む。よって、本研究の成果は、水熱分解における反応条件が重質油の化学的・物理的性状に及ぼす影響を明らかにするとともに、高温高圧水を応用した新たなマテリアルリサイクルの可能性、社会インフラの維持・更新に伴う資源の持続的利用、環境負荷低減の可能性を広げる一助となることを期待する。

研究成果の概要(英文)：Through this research, we have worked on developing an asphalt rejuvenation technology using water (high-temperature, high-pressure water). As a result, we have found that when subcritical water near the critical point is used as a solvent, the asphalt becomes lighter as the reaction temperature and reaction time increase, and that reaction conditions of 350°C and 15 minutes are appropriate for reusing asphalt as a paving material. Furthermore, we have confirmed that asphalt that has been repeatedly recycled and has aged and deteriorated can be rejuvenated to a quality comparable to that of new asphalt by hydrothermal decomposition under the same conditions.

研究分野：土木工学

キーワード：舗装材料 リサイクル アスファルト 亜臨界水 水熱分解 持続的利用

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

舗装発生材を利活用するための技術開発は、わが国で既に半世紀もの歴史がある。近年では、その99%を機械破碎によって再資源化し、うち6割をアスファルトコンクリート再生骨材(以下、再生骨材)として再生加熱アスファルト混合物(以下、再生混合物)に配合することで、図-1のとおり量的に高水準なリサイクルシステムを構築している。

現在、再生混合物の出荷量はアスファルト混合物全量の75%を占め、再生骨材配合率は45%程度を平均として全国的に増加傾向にある。特に資材需要の高い都市部では、図-2のように繰返し再生が進行しつつあり、舗装発生材中の旧アスファルトが低針入度化しているとの指摘もある¹⁾。

他方、素材供給の観点から残存資源の枯渇化はもとより、産地の保全や開発を背景に良質骨材の確保が容易でない現状にある。加えて、原油の重質化と需要の軽質化に対応した白油化技術等の進展に伴いアスファルトの需給バランスが将来的に締まる可能性も考えられる。

今後も舗装材料の安定供給を維持するには、既往技術による繰返し再生と並行し、持続可能な再資源化技術の確立に向けて先駆的な取組みが求められる。さらに、舗装発生材の再資源化が舗装の長寿命化や多機能化を支える堅固な技術的基盤であり続けるためにも、質的により高水準なリサイクルシステムを構築しなければならない。

2. 研究の目的

既往のリサイクルシステム(図-1)に関しては、再生用添加剤や再生骨材配合率の適性化を焦点として、国内外で様々な検討がなされてきた。このなかで、図-3のとおり再生用添加剤の効果が再生3回目以降に大きく減衰する可能性が指摘されており²⁾、図-2の再生回数を踏まえると近い将来、繰返し再生の行き詰まりが危惧される。

他方、水熱分解技術は食品製造やバイオマス発電など、幅広い分野で応用が検討されており、高温高圧水を溶媒とするプラントも既に国内外で稼働し始めている。近年では、超重質油の改質技術等への応用も検討されているが、マテリアルリサイクルへの応用事例は乏しい現状にある。

以上を踏まえ、本研究課題では『老化したアスファルトの性状を『水』(水熱分解)により若返らせ、持続的利用を実現できるか?』を核心的問いとし、「問1 老化したアスファルトの性状回復に適した反応条件は?」「問2 老化と回復を繰返したアスファルトの性状は?」を体系的に解明して、“舗装用資材の持続可能性を担保し得る革新的な再資源化技術の実現”を目的とする。

3. 研究の方法

(1) 水熱分解実験

身近な溶媒である『水』は、図-4のとおり温度と圧力によって状態が変化し、臨界点(374°C, 22.1MPa)近傍の高温高圧水(以下、亜臨界水)は常温の水とは全く異なる溶媒特性を發揮する。本研究では、この溶媒特性のうち(1)比誘電率が小さく有機物質を溶解または高分散させる可能性、(2)イオン積が大きく水自体が強酸・強アルカリの働きをして加水分解を促進させる可能性に着目し、亜臨界水を溶媒とした水熱分解によるアスファルトの性状回復効果を評価した。



図-1 既往技術によるリサイクルシステム

※「再生」は再生混合物、「新規」は新規混合物を示す
 ※「再生」の数字は出荷量から推計した再生回数を示す

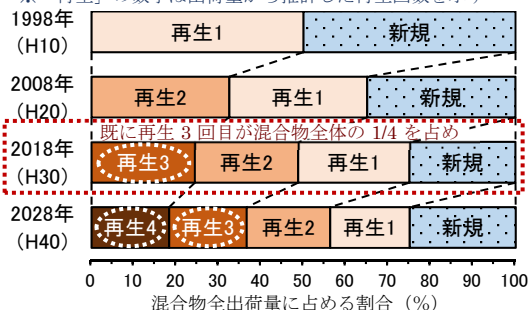


図-2 再生混合物の割合と再生回数

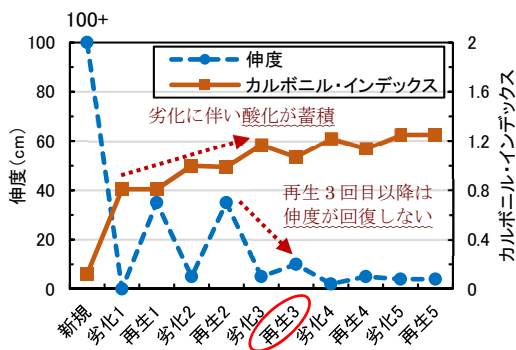


図-3 繰返し再生に伴う老化的蓄積

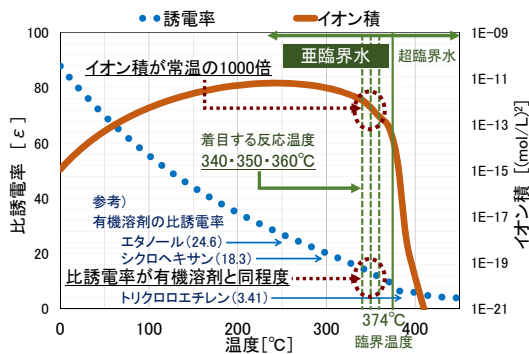


図-4 水の比誘電率とイオン積の変化

水熱分解実験は、既報研究および予備実験の成果を資源とし³⁾、反応温度 350°C、反応時間 15 分を基本条件として前回課題 (JPI26820179) を通じて開発した図-5 の亜臨界水反応装置を用いて実施した。以下に、本課題の間 1、間 2 を解明するための実験・評価方法をそれぞれ詳述する。

反応槽内容積	1000ml
最高使用圧力	19MPa
最高使用温度	350°C
容器材質	SUS316
ヒーター	アルミブロックヒーター
適用法規	小型圧力容器

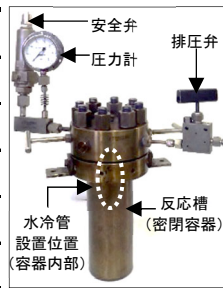


図-5 亜臨界水反応装置(密閉容器)

(2) 性状回復に適した反応条件の検討 (問 1)

① 実験方法

供試体は一般的な表層用バインダであるストリートアスファルト 60-80 を標準試料 (以下、ORG) とし、薄膜加熱試験 (JIS K 2207:1996 準拠) および加圧劣化試験 (ASTM D 6521-03a) によって針入度が 20 (1/10mm) となるまで促進劣化させた劣化アスファルト (以下、AGI) を水熱分解に供した。反応温度は前述の基本条件に対し、比誘電率が低く溶解性能が期待できる 360°C、イオン積が高く加水分解性能が期待できる 340°C を比較条件として反応時間 10・15・20 分による性状回復効果の評価した。実験の手順は図-6 に示すとおりである。

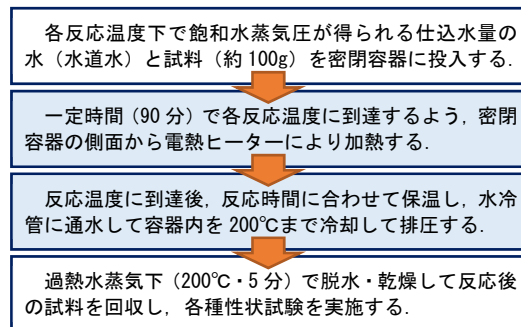


図-6 水熱分解実験の手順

② 評価方法

水熱分解がアスファルトの化学的性状に及ぼす効果を分子量分布、赤外吸光度、組成分析より確認した。分子量分布は、ゲル浸透クロマトグラフィーにより反応前後における構造的変化を把握した。赤外吸光度はフーリエ変換赤外分光光度計による全反射測定法により、酸化に伴う酸素含有官能基の増加に着目してカルボニル・インデックス (C=C 結合による 1600cm⁻¹ 付近と C=O 結合による 1700cm⁻¹ 付近のピーク高さの比) (以下、CI) を求め、劣化と性状回復に伴う酸化度合いの変化を確認した。組成分析は薄膜クロマトグラフ法 (JPI-5S-70-2010) によって構成成分比率を把握し、コロイダル・インデックス (以下、Ci) を求めてアスファルテン分の解膠性を評価した。

水熱分解がアスファルトの物理的性状に及ぼす効果を針入度、軟化点、伸度より確認した。各試験は舗装調査・試験法 (JIS K2207) に準じて実施し、さらにダイナミックシアレオメータ試験 (以下、DSR 試験) により粘弾性状を把握して舗装用素材としての品質を多面的に評価した。なお、各試験においては再生用添加剤により AGI の針入度を 60 に調整した再生アスファルト (以下、Pen60) を比較試料とし、一部評価ではポリマー改質アスファルト II 型 (以下、Type 2) および同 III 型 (以下、Type 3) を比較試料に加えて同様に評価した。

(3) 繰返し再生に対する適応性の検討 (問 2)

① 実験方法

供試体は表-1 に示す飽和系 (以下、SA) および芳香族系 (以下、AR) の再生用添加剤を用いて前述の AGI を再生し、それぞれ図-7 の手順で劣化を 3 回繰返したアスファルト (以下、3AGI(SA)、3AGI(AR)) を標準試料とした。ここで、劣化 3 回目のアスファルトを対象とした理由は図-2 の現状と図-3 の課題を考慮したためである。反応条件は前述の検討から効果が認められた 350°C・15 分とし、水熱分解により性状回復させた各アスファルト (以下、3HY(SA)、3HY(AR)) と再生用添加剤により 3 回目の再生を繰返した各アスファルト (以下、3AD(SA)、3AD(AR)) の性状を比較評価した。

表-1 再生用添加剤の種類と構成成分

種類	構成成分比率 (%)			
	飽和分	芳香族分	レジン分	アスファルテン分
飽和系 (SA)	82.8	13.5	3.6	0.1
芳香族系 (AR)	25.1	72.3	1.8	0.8

② 評価方法

3AGI(SA) および 3AGI(AR) に対する水熱分解の効果を前述の検討と同様に化学的性状と物理的性状の両視点から評価した。加えて、ここでは各性状試験の結果を踏まえ、水熱分解後のアスファルトを配合した混合物を作製し、0・20・60°C の圧裂試験により性状を評価した。

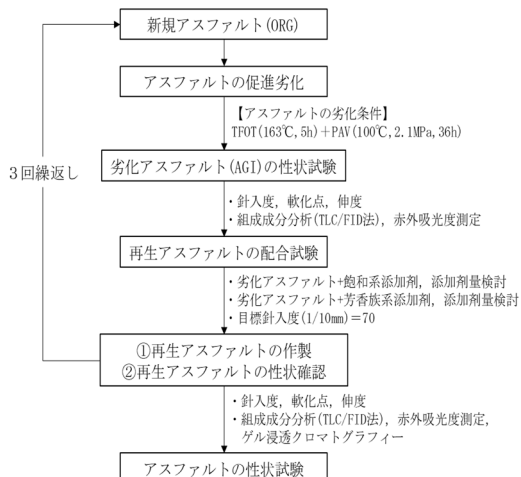


図-7 繰返し劣化・再生の手順

4. 研究成果

(1) 性状回復に適した反応条件の検討 (問 1)

① 化学的性状

酸化度合いを表す CI を反応条件ごとに図-8 に

示す。ここでは、参考として C=O 結合の量を表す波数 1700cm⁻¹ のピーク高さを併記した。なお、これ以降、各図表における凡例は、反応温度に括弧書きで反応時間を付す。

水熱分解によって性状回復されたアスファルト（以下、回復アスファルト）は、反応温度の上昇、反応時間の増加に伴い CI が減少し、350℃以上では AGI から概ね半減して Type 2、Type 3 と同程度となった。このことは、水熱分解によるアスファルトの溶解、熱分解、加水分解等の相互作用によって、酸化還元反応が生じた可能性を示唆する。一方、既往技術による Pen60 は CI が比較的高いままであり、再生の都度、アスファルトの劣化因子である酸化物が蓄積される可能性を確認した。

構成成分比率を反応条件ごとに図-9 に示す。ORG と比べ、AGI はレジン分が増加し、芳香族分が減少したのに対し、回復アスファルトは全ての反応条件においてこれが回復する傾向を示した。これは、水熱分解によりアスファルトの劣化に伴って増加した高分子成分が分解された可能性を示唆する。一方、Pen60 は再生用添加剤を加えたことで相対的に芳香族分が増加し、レジン分が減少したと考えられ、回復アスファルトと Pen60 の構成成分比率は概ね類似する結果となった。

回復アスファルトの結果を代表して反応温度 350℃による分子量分布の変化を図-10 に示す。ここで、分子量のピークを图中左上に、45000~100000 を图中右下に拡大して、各試料の特徴を明示した。ORG に比べて、AGI は分子量のピーク付近が低下し、45000~100000 に膨らみが生じたのに対して、回復アスファルトは全ての反応条件においてこれが回復する傾向が見られた。これは、構成成分比率の変化にも見られた劣化に伴う高分子成分の分解を裏付けている。一方、Pen60 はピークが低分子側に移行して高くなったものの、45000~100000 の膨らみに AGI からの変化は見られなかった。これは、再生用添加剤によって低分子成分が増加する一方、劣化により増加した高分子成分を減少させる効果がないことを示している。

②物理的性状

針入度、軟化点、伸度をそれぞれ反応条件ごとに図-11~13 に示す。ORG から AGI への劣化傾向に対して、針入度、軟化点、伸度とも全ての反応条件において回復する傾向が見られ、針入度は反応温度の上昇に伴って増加し、伸度は反応時間の増加に伴い向上する結果となった。一方、既往の再生用添加剤を用いて針入度を 60 に調整した Pen60 は、軟化点が ORG と同程度になったものの、伸度は十分に復元しなかった。このことから、回復アスファルトの物理的性状は既往技術による Pen60 に比べて ORG に近似し、反応温度が 350℃以上、反応時間が 15 分以上の反応条件においては針入度、軟化点、伸度が概ね同程度となって安定した効果が得られる可能性を確認した。

このほか、DSR 試験の結果から、疲労ひび割れ抵抗性の参考となる $|G^*| \cdot \sin \delta$ は低温域において ORG よりも回復アスファルトが小さく、Pen60 と同等の回復効果が認められた。また、回復アスファルトは耐流動性の参考となる $|G^*|/\sin \delta$ が高温域において ORG よりも大きく、Type 2 および Type 3 と同程度となったことから、低温時、高温時とも舗装用バインダとして十分な性能を有する可能性を確認した。

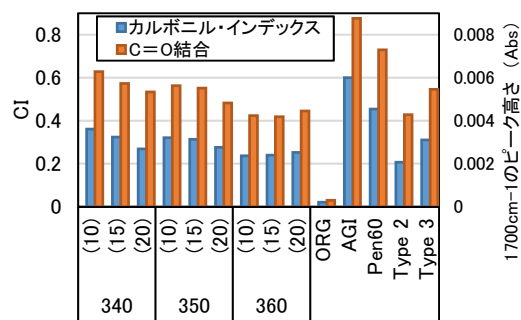


図-8 カルボニル・インデックス (CI)

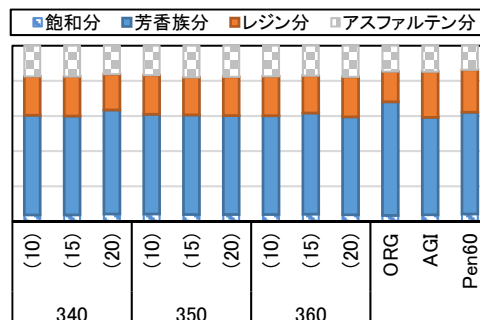


図-9 構成成分比率

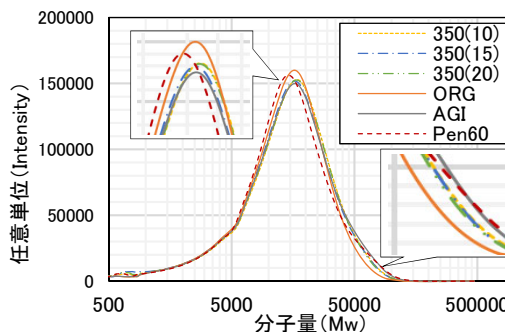


図-10 分子量分布

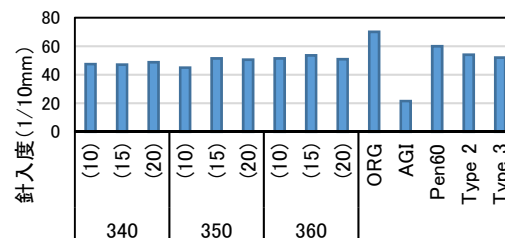


図-11 針入度

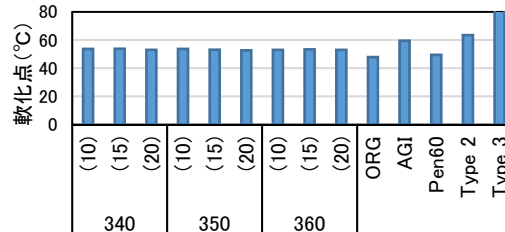


図-12 軟化点

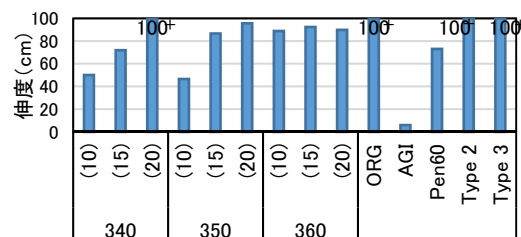


図-13 伸度

(2) 繰返し再生に対する適応性の検討 (問2)

① 化学的性状

各 3AGI の化学的性状に対する水熱分解の効果を既往の再生方法と比較して図-14~16 に示す。水熱分解後の 3HY(SA), 3HY(AR)とも、前述の検討と同様に各 3AGI に比べて CI が半減し、構成成分比率および分子量分布から劣化に伴い増加した高分子成分が水熱分解により低分子化される効果を確認した。しかしながら、繰返し再生の過程で用いられた再生用添加剤の種類により回復アスファルトの化学的性状に差異が生じる可能性が見られ、これが混合物性能に及ぼす影響に注視して今後の検討課題とする。

② 物理的性状

各 3AGI の物理的性状に対する水熱分解の効果を既往の再生方法と比較して表-2 に一覧で示す。水熱分解後の 3HY(SA), 3HY(AR)は、針入度、軟化点、伸度とも前述の検討と同様に回復する傾向が見られ、いずれも回復の度合いは既往の再生用添加剤による 3AD(SA), 3AD(AR) に比べて大きい。一方で、回復アスファルトの物理的性状においても化学的性状で見られた再生用添加剤の種類による差異が生じ、特に 3HY(AR)では針入度が過度に増加した。これは、繰返し再生の過程で 3AGI(AR) に蓄積された芳香族分は、水熱分解によってより軽質化されやすい可能性が考えられ、添加剤や改質剤に及ぼす効果を考慮した反応条件の最適化を今後の検討課題とする。

③ 混合物性状

①, ②の検討より、回復アスファルトの性状が ORG の規格値を概ね満足した 3HY(SA)を対象として、これを 100%配合した混合物 (以下、3HY 混合物) の性状を圧裂試験により確認した。なお、回復アスファルトによる供試体の作製手順は、新規アスファルトによる供試体と同様であり、同一の混合・締固め温度によって同程度の密度、空隙率、飽和度が得られた。

20°Cの圧裂係数を図-17、0°Cと 60°Cの圧裂強度比を図-18 に、飽和系の再生用添加剤により繰返した再生した混合物 (以下、3AD 混合物) と比較して示す。3HY 混合物の圧裂係数は再生混合物の目標値を満足し、圧裂強度比は 3AD 混合物と同程度となった。このことから、本技術による回復アスファルトは再生用添加剤を使用することなく新規アスファルトによる混合物と同等の性状が得られる可能性が認められ、長期の耐久性や品質安定性に着目した評価を今後の検討課題とする。

<引用文献>

- 1) Kazunari HIRAKAWA, Hiroyuki NITTA, Shoichi AKIBA, Atsushi KAWAKAMI: The Effect of Chemical Component in Rejuvenator on the Properties of Repetitive Recycled Asphalt Mixture, 15th REAAA, Vol. 3, 2017.
- 2) 川上篤史, 川島陽子, 新田弘之, 寺田剛, 藪雅行: 繰返し劣化・再生されたアスファルトおよびアスファルト混合物の性状変化に関する一検討, 土木学会論文集 E1, Vol. 73, No. 3, pp.155-161, 2017.
- 3) 加納陽輔, 赤津憲吾, 秋葉正一: 水熱分解法を応用した旧アスファルトの性状回復技術に関する基礎研究, 土木学会論文集 E1, Vol. 74, No. 3, pp. I_53-I_61, 2018.

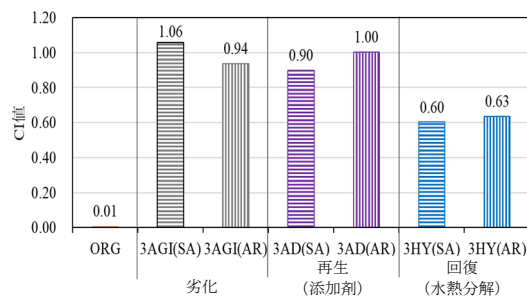


図-14 カルボニル・インデックス (CI)

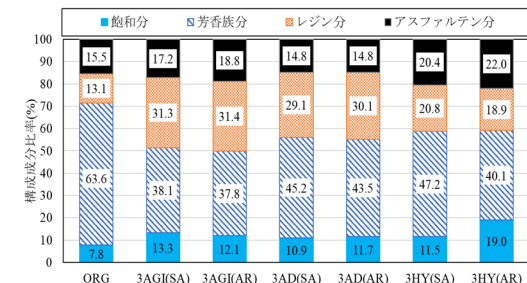


図-15 構成成分比率

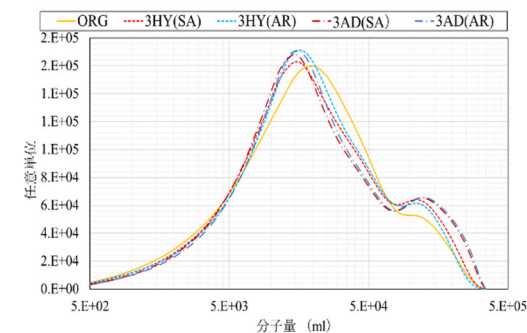


図-16 分子量分布

表-2 物理的性状

試料	針入度 (1/10mm)	軟化点 (°C)	伸度 (cm)
新規 ORG	70	46.0	100+
劣化 3AGI(SA)	37	60.8	7
劣化 3AGI(AR)	35	57.0	7
再生 3AD(SA)	69	49.1	18
再生 4AD(AR)	69	51.1	25
回復 3HY(SA)	69	51.0	35
回復 3HY(AR)	118	46.0	61

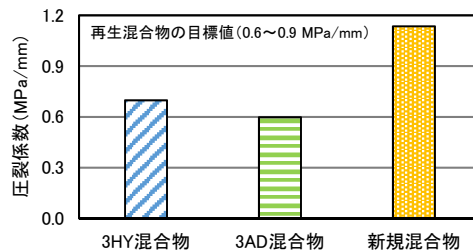


図-17 圧裂強度 (20°C)

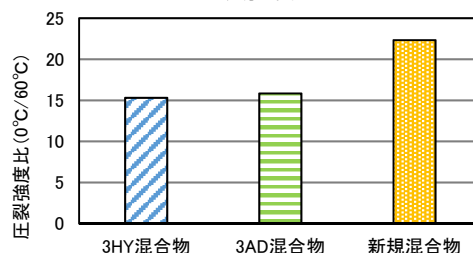


図-18 圧裂強度比 (0°C/60°C)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 赤津憲吾, 加納孝志, 八木正輝, 加納陽輔, 秋葉正一	4. 巻 78
2. 論文標題 アスファルトの繰返し再生に対する水熱分解法の適応性	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 土木学会論文集E1	6. 最初と最後の頁 18-24
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2208/jscejpe.78.2_1_18	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kengo Akatsu, Yousuke Kanou and Shouichi Akiba	4. 巻 -
2. 論文標題 Technical Approaches to the Recycling of Reclaimed Asphalt Pavement into Aggregate and Binder	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Construction Materials	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/constrmater2020007	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 赤津憲吾, 加納孝志, 八木正輝, 加納陽輔, 秋葉正一
2. 発表標題 アスファルトの繰返し再生に対する水熱分解法の適応性
3. 学会等名 土木学会舗装工学講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 加納陽輔
2. 発表標題 アスファルト舗装用素材の永続リサイクルに向けた取り組み
3. 学会等名 第34回日本道路会議 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 赤津憲吾、加納陽輔、秋葉正一
2. 発表標題 アスファルト混合物の持続可能な分別再資源化技術の確立に向けて
3. 学会等名 石油学会（招待講演）
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 加納陽輔	4. 発行年 2021年
2. 出版社 日本道路建設業協会	5. 総ページ数 6
3. 書名 道路建設	

1. 著者名 赤津憲吾、加納陽輔、秋葉正一	4. 発行年 2021年
2. 出版社 石油学会	5. 総ページ数 1
3. 書名 PETROTECH	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	新田 弘之 (NITTA Hiroyuki) (00355869)	国立研究開発法人土木研究所・土木研究所（つくば中央研究所）・上席研究員 (82114)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	秋葉 正一 (AKIBA Shouichi) (10267031)	日本大学・生産工学部・教授 (32665)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関