

KAERI/AR-486/98



KR9800589

방사성 폐기물의 아스팔트고화체 기술현황

State of the Art Report on Bituminized
Waste Forms of Radioactive Wastes

29 - 41 한국원자력연구소

R

제 출 문

한국원자력연구소장 귀하

이 보고서를 “방사성 폐기물의 아스팔트고화체”에 관한 기술현황분석보고서로 제출합니다.

1998. 3

과제명 : 방사성 폐기물 처리시설 운영

주저자 : 연구원 김태국

공저자 : 선임연구원 손종식

책임연구원 김길정

책임기술원 이강무

선임연구원 정인하

책임감수위원 : 책임연구원 서인석

감수위원 : 책임연구원 김준형

요 약 문

중 저준위 방사성액체폐기물은 주로 시멘트, 아스팔트, 고분자물질(Polymer)에 의하여 고화처리되고 있다. 아스팔트고화공정은 시멘트에 비하여 폐기물의 감용률이 우수하고 방사성물질의 침출률이 낮다는 장점이 있으며 고분자물질과 비교하면 저렴한 처리비용과 감용률에 있어서 우수한 장점을 지니고 있다. 방사성폐기물 처리과정에서 고화매질인 아스팔트를 이용하여 형태유지 및 기계적강도가 우수하며 장기 안정성을 지니는 안정된 아스팔트 고화체의 연구개발이 필요하게 되었다. 방사성폐기물 처리에 사용되는 아스팔트의 물리,화학적성질 및 아스팔트이용과 아스팔트고화체의 특성, 침출저항, 열 및 기계적안정성 등을 문헌을 통하여 평가하고 고화처리기술과 고화공정을 조사하였다. 또한 고화체내에 폐기물의 함량을 극대화 하면서 침출률 및 열적저항, 압축강도를 증대시킬 목적으로 농업용 PE Film을 아스팔트고화체에 첨가하여 고화체 내에서의 폐기물의 침강방지, 강도강화 및 수분과 접촉시 고화체의 팽윤 등을 최저로 하는 안정된 고화체성분을 규명한 고화체 제조방법을 제시하고 점도, 팽윤, 압축 강도 및 침출특성에 관한 연구방향을 제시하였다. 따라서 본 보고서에서는 아스팔트고화와 관련된 연구현황을 조사하고 이 문헌연구를 토대로 아스팔트 고화체의 최대 결점인 형태 안정성 및 기계적 강도의 결핍을 보강하기 위한 고화 보조제를 이용하여 처리할 수 있는 안정된 아스팔트고화체 제조방안을 제시하므로써 향후 처분장 매립지의 환경속에서 장기 안정성을 지니는 아스팔트 고화체를 제조할 수 있을 것으로 판단된다.

Abstract

Low and intermediate level radioactive wastes are solidified mainly by cement, asphalt and polymers. The bituminization process has such merits that the volume reduction and the leach resistance are superior to that of the cementation process. Also, waste treatment cost is less and the volume reduction factor is better than the polymerization process. Therefore, to utilize the bituminization process for the treatment of radioactive wastes, research and development on bituminized waste forms having better mechanical and demensional stability and high leach resistance has been carried out continuously in many countries.

In this report, research and development results on the bituminization of radioactive wastes are closely reviewed, especially regarding waste treatment technologies, solidifying procedures, and the characteristics of asphalt and solidified forms.

A new concept of the bituminization method is suggested in this report which can improve the characteristics of solidified forms. Stable solid forms with high leach resistance, high thermal resistance and good compression strength were produced by the suggested bituminization method, in which spent polyethylene from agricultural farms was added.

These results will be useful for the further development of improved bitumen-based waste forms that will secure long term stabilities in disposal sites.

목 차

제 1 장 서 론	1
제 1 절 연구의 배경 및 중요성	1
제 2 절 연구 목적 및 내용	3
1. 연구 목적	3
2. 연구 내용	3
가. 문헌연구	3
나. 안정된 아스팔트 고화체 제조방법의 개발	4
제 2 장 문 헌 연 구	5
제 1 절 아스팔트의 성질	5
1. 아스팔트의 분류	7
가. 직류 아스팔트(Straight-run distillation bitumen)	7
나. 산화 아스팔트(Oxidized bitumen)	7
다. 유화 아스팔트(Emulsified bitumen)	7
라. 열분해 아스팔트 (Cracked bitumens)	7
마. 커트백 아스팔트 (Cutback bitumens)	8
바. 천연 아스팔트 (Natural bitumens)	8
2. 아스팔트의 이용	8
가. 전통적인 사용	8
나. 방사성폐기물 관리에서의 이용	8
3. 화학적 성질	9
4. 화학적 안정성	12

5. 물리적 성질	15
가. 비중 (specific gravity)	19
나. 부피 팽창계수 (Coefficient of cubical expansion)	20
다. 비열 (specific heat)	20
라. 열전도도 (Thermal conductivity)	21
마. 수증기의 투과도	21
바. 표면장력 (Surface tension)	22
사. 총 표면에너지 (Total surface energy)	23
아. 저항/전도도 (Resistivity/conductivity)	23
자. 절연성의 세기 (Dielectric strength)	24
차. 기계적, 유동학적 성질 (Mechanical and rheological properties)	24
하. 신도와 부서러짐 (Ductility and brittleness)	27
타. 방사선 저항성	27
6. 아스팔트의 장기 거동	29
가. 아스팔트의 내구성	30
나. 다양한 물질과의 반응	32
다. 미생물학적 분해	33
7. 방사성 폐기물 처리에 사용되는 아스팔트	35
제 2 절 아스팔트 고화	38
1. 고화처리기술과 고화공정	40
가. 영국, 벨기에, 서독등에서 개발된 기술	40
나. 미국에서 개발된 기술	40
다. 불란서에서 개발된 기술	41

2. 고화 비용	51
3. 고화체 용기	54
4. 고화체 품질에 영향을 주는 인자	58
5. 고화시 위험인자	63
가. 연구와 결과	63
제 3 절 아스팔트고화체의 성질	67
1. 고화체의 특성	67
가. 고화체의 특성 비교	67
2. 고화체의 안정성에 관련된 성질	67
가. 침출 저항성	69
나. 방사선 안정성과 영향	78
다. 열안정성과 영향	79
라. 침전과 균일성	81
마. 연소성과 폭발성	82
바. 기계적 안정성	85
사. 팽윤	87
제 3 장 안정된 아스팔트 고화체 제조방안	90
제 1 절 실험재료	90
1. 아스팔트	90
가. 아스팔트 고화매질의 장·단점	90
나. 실험에 사용하는 아스팔트	95
2. 고화보조제	96
가. 황(sulfur)	96

나. Polyethylene	98
제 2 절 실험장치 및 방법	101
1. 실험장치	101
2. 실험방법	102
가. 실험항목	103
나. 분석방법	104
제 3 절 예상결과	105
1. 연구배경	105
2. 연구목적	107
제 4 장 결론 및 향후 기대효과	109
참 고 문 헌	111

표 목 차

Table 1. Typical composition of bitumen	11
Table 2. Resistance of bitumen to the effects of chemicals at room temperature	14
Table 3. Equiviscous temperatures	15
Table 4. Applicable standards for the measurement of bitumen properties	18
Table 5. Specific gravity of bitumens	19
Table 6. Specific of bitumen	21
Tabel 7. Surface tenstion of bitumens	23
Table 8. Physical properties of bitumen	29
Table 9. Characteristics of "Shell" bitumens	37
Table 10. Extruder/Evaporator installations for radwaste volume reduction & solidification	48
Table 11. Comparative costs for cementation and bituminization processing of spent resins	51
Table 12. Comparative costs for cementation and bituminization processing of sludge	52
Table 13. Economic example case	53
Table 14. The relative activity distribution when the activity at the bottom was chosen as 100%	62
Table 15. Summary of solidification media characteristics and attributes	68
Table 16. Comparison of heats of explosion	84

Table 17. Physical properties of asphalt 60/70	96
Table 18. Properties of polyethylene	100
Table 19. Comparison of the properties of immobilized waste forms ..	105

그림 목 차

Fig.1. Typical temperature/viscosity chart for bitumens	16
Fig.2. Classification of bituminization systems	42
Fig.3. Flow sheet for the bituminization facility at Mol using a pot form	45
Fig.4. Flow sheet for the bituminization facility at Oarai using a drum form	46
Fig.5 Simplified diagram of a thin film evaporator process	46
Fig.6. Flow sheet for the bituminization facility at KAERI using a thin film evaporator form	47
Fig.7. Simplified diagram of an extruder process	47
Fig.8. DOT-17C drum	55
Fig.9. DOT-17H drum	56
Fig.10. Representative high integrity container(HIC)	57
Fig.11. Cooling curves of bitumen-waste product(55wt% bitumen/ 45wt% NaNO ₃)	61
Fig.12. The distribution of the activity along two vertical samples from both a drum of bituminized powder and granular resin	62
Fig.13. Asphalt extruder/evaporator process pH range	91
Fig.14. Co-60 release from immobilized ion exchange resin	93
Fig.15. Comparison of volume generated by different processing techniques	94
Fig.16. View of heated mixing vessel and mixing blade for the production of laboratory scale asphalt waste forms	102

Fig.17. Schematic model of expected leaching behavior of bitumen waste forms incorporating soluble waste and/or waste which swells upon hydration. The dashed vertical line separates Region A, in which no swelling has occurred and region B, in which there has been enough water uptake to cause swelling.107

Fig.18. Simplified diagram of an enforced concrete-steel drum 108

제 1 장 서 론

제 1 절 연구의 배경 및 중요성

방사성폐기물은 원자력산업에 수반하여 불가피하게 발생되며 발생량도 해마다 증가하고 있다. 따라서 방사성폐기물은 적절한 고화처리를 통하여 최종적으로 인간과 자연환경으로부터 안전하게 격리하여 관리되어야 한다.

고화처리는 폐기물을 침출에 대해 안전한 형태로 만들어 매립시 물과 접촉하는 경우에도 유해물질이 환경으로 누출되는 것을 막거나 지연시키며, 취급, 수송, 일시저장 및 최종매립에 이르기까지 기계적, 물리적, 화학적으로 안전한 형태로 만들기 위함이다. 고화처리는 방사성폐기물의 최종처분을 위한 마지막 처리로써 20~30년 동안 사용되어 온 기술이다. 중.저준위 방사성폐기물을 고화하기 위하여 가장 많이 사용되고 있는 고화매질은 시멘트와 아스팔트이다. 이들은 물리적, 화학적 성질이 전혀 다른 고화매질로 제조 방법과 종류가 다양하다.

시멘트는 특성과 유용성 때문에 원자력 사업 초기부터 방사성폐기물에 적용되어 왔다. 또한 매립기준의 강화에 따라 유해 산업폐기물의 처리에도 처음부터 적용되기 시작하였다. 시멘트 고화공정은 공정이 매우 단순하며 모든 운전이 실은에서 실행할 수 있는 많은 장점이 있으나 고화체의 현저히 낮은 침출저항성, 고화에 따른 부피증가, 특히 폐기물의 조성이 변할 때 품질관리를 조절하기 어려운 단점을 가지고 있다. 이러한 사실이 더 적합한 고화체를 만들기 위한 개발 노력뿐만 아니라 다양한 폐기물에 대한 여러 가지 고화매질의 선택을 가져왔고, 이런 개발 노력은 1950년대 중반에 시작되어 현재에도 진행중에 있다.

아스팔트는 1962년 벨기에 Mol연구소에서 Pilot 규모로 방사성 폐기물을 고화한 이후로 산업적 규모의 시설은 1967년 불란서 Marcoul에 세워졌다. 아스팔트 고화는 주로 유럽을 중심으로 연구되었으나 점차 미국, 캐나다, 일본 등지에서도 많은 연구가 이루어지고 있다.

아스팔트 고화공정은 고화온도가 140~230℃의 비교적 고온을 요구하며, 아스팔트의 가연성, 비방사능이 높을 때 방사분해가스의 발생 가능성, 형태 안정성과 기계적 강도가 없는 등의 단점을 지니고 있으나 기술적 경험이 비교적 풍부하며, 고화에 따른 부피의 증가가 없으며 폐기물에 따라서는 오히려 감용의 효과가 있다. 고화체내 유리수가 없는 것 외에 특히 침출 저항성이 뛰어나다는 장점을 지니고 있다.

아스팔트를 방사성 폐기물에 적용할 경우 비방사능이 높을 때 방사분해가스의 발생 가능성이 있으나 활성이 없는 아스팔트는 접촉하는 물질과 뚜렷한 반응을 하지 않으므로 폐기물의 조성이나 pH가 변할 때도 품질관리가 쉬우며 처리 대상의 폭도 그 만큼 넓다. 그러나 아스팔트 고화체의 최대 결점인 형태 안정성과 기계적 강도의 결핍은 매립지에서 공학적 보강을 필요로 하며 흡수성 물질(hygroscopic substances) 처리시 팽윤현상을 초래하여 침출을 촉진한다. 또한 고화체의 장기적 안정성은 매립지의 환경속에서 고화체의 물리적 형태 안정성에 좌우된다.

매립지의 확보가 어려운 사회여건속에서 폐기물의 감용은 중요한 의미가 있으며 감용을 위하여 폐기물의 소각처리가 증가하고 있는 추세이다. 소각처리는 30~50배의 감용효과가 있으며[2] '93년도 특정 폐기물의 소각처리는 12.9%로 일반 폐기물의 소각처리 2.4%보다 비교적 높은 편이다[1]. 발생된 소각재의 유해 중금속은 감용에 비례하여 30~50배 농축되어짐을 의미한다.

본 보고서는 방사성 액체폐기물 처리과정에서 발생하는 페이온교환수지

를 전처리과정을 거치지 않고 고화매질인 아스팔트를 이용하여 형태안정성 및 기계적강도가 우수한 장기안정성을 지니는 안정된 아스팔트 고화체의 연구개발이 필요하게 되었다. 따라서 페이온교환수지 아스팔트고화체에 고화보조제로 Polyethylene이 원료인 농업용 PE Film을 첨가제로 사용하여 첨가량의 변화, 폐수지 및 아스팔트함량의 변화, 반응온도 및 시간변화 등의 인자를 고려한 최적의 고화체를 만듦으로써 팽윤방지효과, 감용률 및 침출저항성증대, 압축강도를 증대시켜 별도의 공학적 보강을 필요로하지 않는 안정된 고화체를 만들 수 있다. 따라서 본 보고서에서는 아스팔트 고화와 관련된 국내외 연구현황을 조사하고 이 문헌연구를 토대로 아스팔트 고화체의 최대 결점인 형태 안정성 및 기계적 강도 결핍을 보강하기 위해 고화 보조제를 이용하여 처분장 환경속에서 장기 안정성을 지니는 아스팔트 고화체 제조방법을 제시하므로써 실제 방사성폐기물 처리에 적용가능할 것으로 판단된다.

제 2 절 연구 목적 및 내용

1. 연구 목적

본 연구는 방사성폐기물의 고화매질로 오래전부터 사용되어 온 아스팔트를 이용하여 방사성액체폐기물 처리과정에서 발생하는 폐수지를 전처리과정을 거치지않고 또 폐기물처리 고화드럼당 폐수지함유량을 극대화할때 고화 가능성을 입증하는 것이 첫째 목적이다. 또한 아스팔트 고화체의 최대 결점인 형태 안정성 및 기계적 강도의 결핍을 첨가제 또는 보조 고화제를 이용하여 매립지의 환경속에서 장기 안정성을 지니는 안정된 아스팔트 고화체 제조방법을 개발하는 것이 두 번째 연구목적이다.

2. 연구 내용

가. 문헌연구

방사성폐기물 처리에 사용되는 아스팔트의 물리화학적성질 및 아스팔트이용과 아스팔트고화체의 특성,침출저항,열 및 기계적안정성 등을 문헌을 통하여 평가하고 고화처리기술과 고화공정을 조사하여 최적조건의 아스팔트 고화체 제조방법을 제시한다.

나. 안정된 아스팔트 고화체 제조방법의 개발

Polyethylene은 농업용 필름, 각종 용기, 음료수 병의 원료물질이며 성형 온도가 135~230℃로 아스팔트 고화체 제조온도와 같다. 농업용 필름은 미생물 분해가 되지 않아 특정 폐기물로 분류된다. 농업용필름을 재활용한다는 전제하에 Polyethylene을 보조 고화제로 사용하여 혼합 가능성과 아스팔트 고화체의 형태 안정성 가능여부를 평가한다.

향후 아스팔트고화체에 보조 고화제의 첨가량과 반응온도 및 온도에 따른 점도를 측정하여 제작된 실험장치의 작업가능성 과 조업범위, 최적 운전조건을 평가하여 시멘트 고화체 만큼의 압축강도를 지닌 안정된 아스팔트고화체를 제조할 예정이다.

제 2 장 문 헌 연 구

제 1 절 아스팔트의 성질

유럽에서 잘 사용되고 있는 "bitumen" 이란 말은 "asphalt"라는 말보다 더 넓은 의미로 사용된다. bitumen이란 말은 이집트인들이 시체의 방부처리를 위하여 흑해에서 아스팔트를 얻어 사용한 "tombs' pitch"의 의미를 지닌 "pix tumens"로부터 유래한 말이다. Bitumen의 ASTM에 의한 정의는 천연 또는 열로 인하여 생긴 탄화수소의 혼합물로 종종 비금속성 유도체를 동반하며 기체상, 액상, 반고체 또는 고체일 수도 있고 CS₂에 완전히 용해되는 물질로 되어 있다. 아스팔트는 고분자의 지방족과 방향족 탄화수소가 주성분인 유기물질이며 그 성분은 매우 유동적 복합체로 처리 방법에 따라 변한다. 아스팔트의 정확한 분석을 위한 방법은 아직 개발되지 못하여 분석방법은 일반적으로 명확한 화학적 구조보다 상대적 분자량, 화합물의 일반적 성질, 기본적 성분등을 결정하는 정도이다.

아스팔트는 석유의 종류나 천연광상으로 부터 얻어지는데 천연 아스팔트가 석유 종류아스팔트보다 광물질을 포함하고 있는 것 외에는 모든 면에서 비슷하다. 대부분의 가공하지 않은 원유는 다소의 아스팔트를 함유하고 있으며 그 양이 50%에 달할 수도 있다. 아스팔트는 탄화수소의 복잡한 콜로이드계로 연속상과 분산상 사이의 명확한 구분이 어려우며 중유활유와 유사한 유상의 성분내에 교질입자가 분산된 것으로 생각할 수 있는데 유상의 성분을 말텐(maltene), 분산된 입자들을 아스팔텐(asphaltene) 이라 부른다.

아스팔텐의 함유량은 석유납사내의 불용해율에 의해 결정되며 아스팔텐

은 고분자 탄화수소(약 $10^3 \sim 10^5$)로 구성되어 있고, 특성면에서 현저하게 방향족 화합물이다. 탄소/수소(C/H)비는 약 0.8~0.9로 가열시 녹지는 않으나 분해하고 팽창하며 탄화된다. 아스팔트안에는 다양한 양의 황(S), 질소(N₂), 산소(O₂) 및 소금기를 함유한 유정의 물로부터 들어간 염이 있다. 일반적으로 이러한 함유물은 아스팔트를 사용하는데 영향을 미치지 않는다. 아스팔트는 다양한 양의 왁스(Wax)를 함유하는데 석유 증류아스팔트는 석유의 잔여물에서 얻어지므로 그 성분은 자연히 증류에 의해 운반되는 정도에 의존한다.

산화 아스팔트는 더 높은 비율의 아스팔텐 교질입자를 함유하고 직류 아스팔트의 점성과 비교하여 전형적으로 딱딱한 성질을 가지며, 산화공정은 액체흐름이 요구되지 않는 곳에 유용하도록 물질에 탄성과 플라스틱성 성질을 주는 분자구조에 영향을 준다. 한편 산화는 연성을 상당히 낮게하고 어떤 조건하에서는 내구성을 감소시킨다. 아스팔트가 연할수록 주어진 침입도에 도달하기 위해 공기를 불어 넣는 시간이 길어지고 산화된 아스팔트는 더욱 더 플라스틱화 된다.

일반적으로 아스팔트는 다음과 같은 성질을 갖는다.

- 유기물질
- 색깔은 검은색 또는 검은 갈색
- 열가소성 물질
- 점착성 물질
- 실온에서 고체 또는 반고체
- 가열하면 쉽게 액화된다.
- 방수성이 좋다.
- 내구성이 있다.
- 대부분의 산, 알카리, 염에 대한 저항력이 있다.

- 독성이 없다.
- 활성이 없어 접촉하는 물질과 뚜렷한 반응을 하지 않는다.
- 연령과 기후의 영향에 대한 높은 저항력이 있다.
- 많은 유기용매(벤젠, 클로로포름, CS₂)에 녹는다.
- 가볍다 (밀도 0.99~1.2)
- 좋은 전기절연체 이다.

1. 아스팔트의 분류

아스팔트는 제조방법에 따라 아래의 형태로 세분할 수 있다.

가. 직류 아스팔트(Straight-run distillation bitumen)

- 원유의 증류 후 잔류물로 얻어짐
- Softening point : 34~65℃
- Penetration : 2~22 mm

나. 산화 아스팔트(Oxidized bitumen)

- 200~260℃에서 용융된 직류아스팔트에 공기를 주입하여 산화시킴
- Softening point : 70~140℃
- Penetration : 0.7~4.5 mm

다. 유화 아스팔트(Emulsified bitumen)

- 음이온성, 양이온성, 비이온성 유화제를 첨가하여 액화된 아스팔트

라. 열분해 아스팔트 (Cracked bitumens)

- 고분자량 화합물의 열분해에 의하여 얻어짐

마. 커트백 아스팔트 (Cutback bitumens)

- 용매의 첨가로 액화한 아스팔트

바. 천연 아스팔트 (Natural bitumens)

- 채광에 의해서 얻어지며 자연스럽게 생겨난 물질로 구성됨

2. 아스팔트의 이용

아스팔트는 옛날부터 알려져 왔고 여러가지 건축재료인 시멘트로, 방수 재료로 또는 다른 용도로 수천년 동안 사용되었다. 최초의 사용은 인도의 모헨조다로 시대로 BC.3000년 초기에 저수지의 벽돌벽사이 물막음공사에 사용되었다. 중동에서는 길과 토목공사의 물막음, 시체의 부패방지 등 광범위하게 사용되었다.

가. 전통적인 사용

오늘날에도 아스팔트는 다양한 목적으로 사용되는데 예를들면 도로 포장, 지붕이는 재료, 마루까는 재료, 절연용재료, 자동차의 방수재, 수로와 저수지의 라이닝, 배관의 내산성 피막페인트, 프린트용 잉크, 열과 전기 절연물질, 해안침식방벽, 방음제 등으로 사용되고 있다. 현재 미국에서는 원유에서 얻어진 약 75%의 아스팔트가 도로포장용으로 사용되고 지붕이는 재료로 약 15%, 그리고 나머지는 부분적으로 위에 열거된 목적으로 사용된다.

나. 방사성폐기물 관리에서의 이용

방사성폐기물관리 분야에서 아스팔트 사용에 관한 연구는 1958년 미국 ORNL (Oak Ridge National Laboratory)에서 최초로 시도되었다[3].

1960년 부터 중.저준위 방사성폐기물의 혼합을 위한 고화매질로서 아스팔트의 사용이 증가하였다. 방사성폐기물의 아스팔트고화처리에 대한 실험도 장치제작은 벨기에에 있는 Mol의 핵에너지연구센터와 불란서에 있는 Marcoule의 플루토늄 생산센터에서 실행되어졌다[4,5]. Mol에 있는 장치는 1960년부터 1964년 까지 건설되어 1964년 부터 Mol의 연구센터에서 발생하는 모든 농축폐액과 슬러지를 처리하는데 쓰여졌다. 그리고 경험있는 사건이나 중요한 문제는 발생하지 않았다[6]. 방사성폐기물의 아스팔트고화처리를 위한 두번째 시설은 1965년에 불란서 Marcoule에서 가동되었는데 그 이후로 유럽의 여러나라에서 이용되었다. 큰 규모의 아스팔트고화처리 공정은 서독 Karlsruhe에 있는 핵연구센터와 벨기에 Mol에 있는 Eurochemic 회사에서 가동되었다[7,8].

오늘날에는 다양한 처리용량의 아스팔트고화처리 시설이 여러나라의 핵연구센터, 원자력발전소, 기타 산업적 핵에너지연구소 등에 존재하고 있다.

3. 화학적 성질

원유의 산지와 처리방법에 따라서 화학적 성분이 다른 많은 종류의 아스팔트가 있는데 때로는 27wt% 이상의 광물질이 혼합되어 있을 수도 있으며, 100℃ 로 가열하여 물과 가스를 방출하면 광물질(무기물)함유량이 38wt% 보다 높을 수도 있다. 모든 아스팔트는 순수한 물에 불용성이며 일반적으로 70℃ 이하의 온도에서는 고체이다. 광물질, 물, 가스가 없는 아스팔트는 주로 탄소(80~88%), 수소(8~11%), 산소 (1~12%), 황(1~7%) 및 질소(1.5%로 추정)로 구성되어 있다. 이 다섯가지 원소는 4가지의 중요한 성분을 만든다.

- 포화 탄화수소 (saturated hydrocarbons)
- 고리 탄화수소 (cyclic hydrocarbons)

- 수지 (resin)
- 다양한 비율의 아스팔텐 (asphaltene)

아스팔트내의 아스팔텐의 양은 10~32% 범위이며, 아스팔텐은 물과 비이온성 파라핀 탄화수소에는 불용성이고 이황화탄소(CS_2)와 클로로포름($CHCl_3$)에 용해되며 알콜, 에테르, 작은 분자량의 파라핀 탄화수소에는 극히 일부분만 용해된다. 아스팔텐은 산소(3~11%)와 황(7~9%)을 많이 함유하며, 고분자량(1500이상)의 방향족과 복소환식(heterocyclic)의 탄화수소로 구성되어 있다. 아스팔텐은 180~280°C 범위에서 녹으며, 적당한 온도에서의 수소화반응에 의해 아스팔텐은 부분적으로 수지물질로 변환 될 수 있다. 또 고온과 압력증가시 수소화반응은 낮은 수율의 액체 탄화수소를 만든다. 수지는 대부분 탄화수소 용매에 용해되는 무정형고체이며, 수지를 형성하는 화합물은 구조적으로 아스팔텐을 형성하는 화합물과 유사하다. 천연 아스팔트는 20%까지 수지를 함유할 수도 있지만 일반적으로 10%이하이다. 아스팔텐과 비슷한 수지는 오히려 산소, 황을 더 많이 함유하고 대부분의 분자량은 약 800정도인 naphthenic acid 이다.

아스팔텐내의 파라핀 탄화수소, 나프타 탄화수소, 방향족 탄화수소와 산소, 황, 질소 및 적은 양의 여러가지 물질을 함유하는 복소환식 화합물(heterocyclic compounds)로 500~5000 범위의 분자량을 갖는다. 황은 thiophene과 benzthiophene에 이미 존재하고 SO에도 적은 양이 존재한다. 질소는 pyridine과 pyrrole-type compound로 이미 존재한다. 산소는 hydroxyl, carbonyl, ester group에 이미 존재한다. 탄화수소 분율의 35% 정도가 포화되어 있고 약 50% 또는 그 이상이 방향족이다.

아스팔트 성분(주로 아스팔텐과 말텐)의 화학적 특성을 규명하는 가장 간단한 방법은 연소분석에 의해 얻어지는 물질내의 탄소와 수소의 원자비(C/H 비)에 의해 특성을 알 수 있다. 이 비율은 그 자체의 방향족 특성을

나타내는데 비율이 높을수록 방향족의 성질을 강하게 나타낸다. 포화 지방족 탄화수소는 $C/H = \sim 0.5$, 벤젠(benzene)은 $C/H = 1$, 나프탈렌(naphthalene)은 $C/H = 1.2$ 이다.

전형적인 아스팔트의 주요 화합물과 성분을 요약하면 Table 1과 같다.

Table 1. Typical composition of bitumen[9]

Main compounds	wt %
Aromatics and naphthoaromatics	38.3
Asphaltenes	15.6
Saturated <i>i</i> - and cyclo-olefins	16.1
Neutral heterocompounds	14.2
Basic heterocompounds	8.5
Acid heterocompounds	7.2
Saturated <i>n</i> -olefins	< 0.1
Main elements	wt%
Carbon	84
Hydrogen	10.3
Sulphur	4.1
Oxygen	1.2
Nitrogen	0.4
Aluminium	~ ppm
Silicon, Vanadium, Nickel	~ ppm

4. 화학적 안정성

일반적으로 아스팔트는 실온에서 많은 시약에 대해 매우 저항력이 강하다. 그러므로 화학적 반응물질의 보호를 위해 사용되고 있다. 아스팔트는 높은 온도에서 산소, 황, 염소와 같은 여러시약과 반응할 수 있으며 이 성질은 특별한 목적의 아스팔트를 제조하는데 이용된다. 이러한 반응들은 주로 아스팔트의 탈수소화(dehydrogenation)와 아스팔텐의 형성에 영향을 준다.

화학적 변화는 다른 물질과의 접촉없이 아스팔트가 높은 온도(>300℃)에 노출되었을 때 일어날 수도 있다. 이 현상은 증류에 의한 아스팔트 생산 뿐만아니라 폐기물의 아스팔트고화처리 공정에서도 고려하여야 한다. 화학적 및 열에 대한 안정성은 아스팔트의 화학적 성분에 영향을 받으므로 성분의 차이는 반응속도 차이의 원인이 된다. 그러나 반응형태의 차이는 뚜렷하게 관찰되지 않는다.

산소와 아스팔트의 반응은 산화아스팔트 제조공정에서 중요하고, 아스팔트를 사용할 때 항상 공기와 접촉하기 때문에 중요시 된다. 반응속도는 온도에 많이 의존하며, 산화아스팔트 제조공정에서 일반적인 조건하에서는 공기와 용융된 아스팔트가 250℃ 또는 그 이상의 온도에서 접촉할 때 반응은 매우 빠르다. 아스팔트가 실온에서 공기와 접촉할 때 아스팔트가 매우 단단하면 반응은 매우 느리게 진행된다. 아스팔트는 산화에 의하여 단단해 질 수 있으며, 산화속도는 빛의 존재하에서 매우 빠르다[13]. 밝은 곳에서 산화는 촉진되는데 경화는 약 5 μ 깊이로 제한된다. 어두운 곳에서 경화는 2.5~5mm 아래서 일어난다. 햇빛이 없는 상태에서는 아스팔트 종류에 따라 산화에 대한 민감성도 매우 다르다. 예를들면 산화아스팔트(blown bitumen)는 산화에 대해 매우 큰 저항성을 갖는다. 약 50 μ 깊이의 아스팔트층에서 빛의 강도는 1% 정도 감소한다. 아스팔트의 밀도가 매

우 높기 때문에 산소가 확산에 의하여 내부에 도달하는 속도는 매우 느리다. 이러한 요소들이 대기의 영향에 대한 아스팔트의 저항력을 높여 주고 있다.

일반적으로 아스팔트는 산성용액보다 알칼리용액에 더 저항력이 크다. 비록 묽은 알칼리용액은 염을 형성하기 위해 산성적 아스팔트 성분과 반응을 하지만 실온에서는 진한 알칼리용액에도 아스팔트는 공격을 받지 않는다. 산에 대한 아스팔트의 내구성은 산의 농도에 의존하는데 일반적으로 진한 산은 아스팔트를 공격한다. 묽은 산과 오랫동안 접촉하면 아스팔텐의 생성에 의하여 아스팔트의 경화(hardening)를 야기 할 수 있다. 진한 황산 (96%)은 아스팔트의 방향족 화합물을 공격하지만, 포화된 탄화수소는 200℃ 에서도 공격을 받지 않는다. 아스팔트는 묽은 황산에 저항성이 있고 실온에서는 진한 염산에도 매우 저항성이 강하다. 아스팔트는 질산(HNO₃)에 저항성이 없는데 진한 질산은 산화와 질화(nitration)에 영향을 준다. 묽은 질산 역시 낮은 농도와 실온에서조차 아스팔트를 공격한다. 그러므로 아스팔트는 질산에 대한 보호물질로는 적합치 않다. 역으로 묽은 질산은 아스팔트고화장치의 탄화된 아스팔트 찌꺼기를 제거하는 제염용액으로 사용되고 있다.

Table 2는 실온에서 여러가지 화학물질과 접촉 시간에 따른 아스팔트의 저항성을 보여 주고 있다.

Table 2. Resistance of bitumen to the effects of chemicals at room temperature

(years) Time	Mexphalt 40/50,20/30,10/20				Mexphalt R85/25,R85/40, R115/15			
	0.5	1.0	1.5	2.0	0.75	1.0	3.5	5.0
Inorganic acid								
Hydrochloric acid	≤10%	+	±		-			+
Hydrochloric acid	10-30%	±	±		-			+
Hydrochloric acid	40%					+		
Nitric acid	≤10%	±	-					+
Nitric acid	10-25%	-						±
Nitric acid	25-50%	-						-
Phosphoric acid	5%				+			
Sulphuric acid	≤50%	+		±	-			+
Organic acids								
Acetic acid	20%				+			
Benzoic acid	1.0%					+		
Butyric acid	10%			-				+
Formic acid	85%				+			
Lactic acid	10%			-				+
Phenol solution	1.0%					+		
Picric acid	1.0%					+		
Salicylic acid	0.1%					+		
Inorganic alkalis								
Ammonia	25%					+		
Caustic soda	≤30%						+	
Soda solution	10%						+	
Soda solution (saturated)					+			
Salts								
Chlorine-containing brine							+	
Common salt solution (saturated)							+	
Formaldehyde solution	30%				+			
Magnesium chloride	14%				+			
Sea water								+
Sodium hydrosulphite solution (saturated)					+			
Sodium hypochlorite	5g/l				+			
Sodium sulphite solution (saturated)					+			
'Teepol'							+	+
Waterglass					+			

^a + Not affected, ± little to moderate attack, - strongly attacked.

5. 물리적 성질[11,12]

아스팔트의 물리적 특성은 폐기물에 대한 적합한 피복물질로서 사용에 결정적 중요성을 가진다. 아스팔트는 실온에서 고체 또는 반고체 물질이며 열에 의해 쉽게 액화 할 수 있다. 아스팔트의 점도는 온도의 증가에 따라 감소하며 온도와 점도 사이의 관계는 Fig. 1과 Table 3에서 보는 바와 같이 아스팔트의 형태와 등급에 따라 다르다. 아스팔트는 각각의 사용하는 특정 목적에 맞도록 충분히 유동성을 가질 때까지 가열한다.

Table 3. Equiviscous temperatures (°C)

Mexpphalt Grade	Viscosity in cSt						
	20,000	5,000	2,000	1,000	200	100	50
180/200 ("Spramex")	70	85	97	108	138	156	176
80/100	78	94	106	117	149	166	187
60/70	85	101	113	123	155	172	193
50/60	88	104	116	125	158	175	197
40/50	91	107	119	130	162	179	201
30/40	95	111	124	135	168	185	208
20/30	101	117	130	142	175	193	216
10/20	111	128	141	153	185	206	228
H 80/90	133	150	163	172	206	224	246
H 100/110	154	170	184	195	227	245	-
R 85/25	126	144	157	169	205	225	248
R 85/40	127	144	157	168	201	220	243
R 95/15	143	161	176	188	225	245	-
R 115/15	166	185	202	216	(266)	-	-
R 135/10	190	210	225	240	-	-	-

폐기물의 아스팔트고화처리에서 최적 적용점도는 섞일 수 있는 폐기물의 특성, 아스팔트와 폐기물 고형분의 비, 혼합기의 형태, 물의 증발속도등과 같은 여러인자에 의해 결정되며, 여러가지 인자들을 고려해야 하기 때문에 특정한 경우에 대한 가장 적합한 점도는 시행오차(trials)에 의해 찾아야 한다.

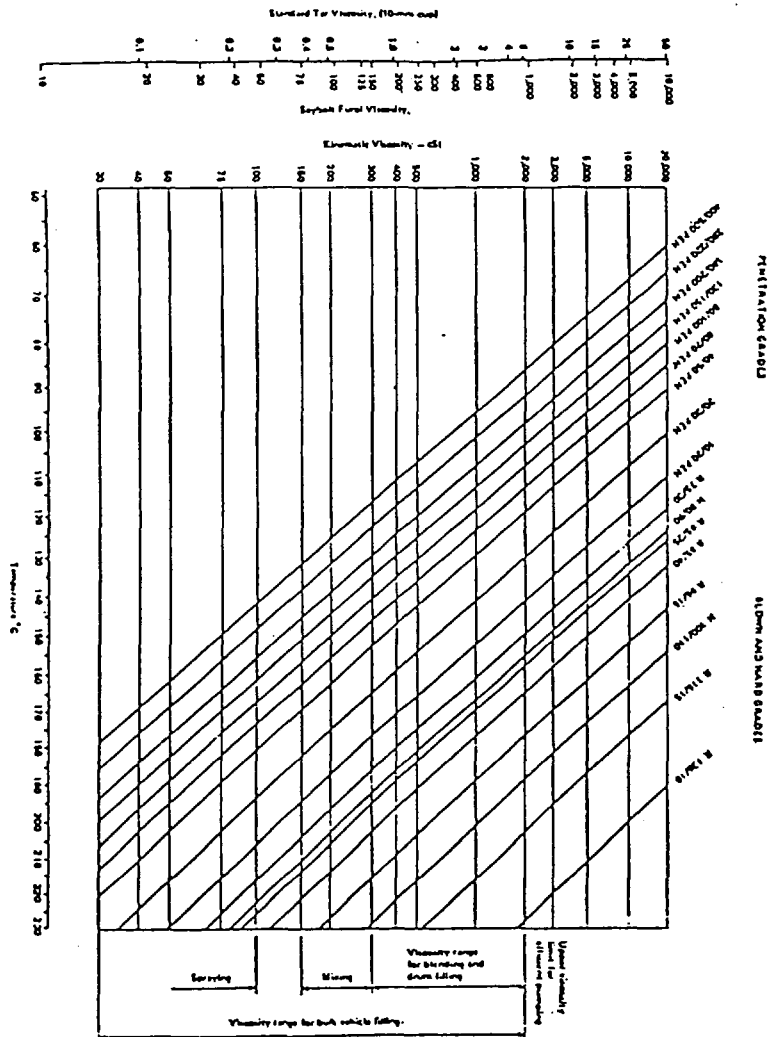


Fig. 1. Typical temperature/viscosity chart for bitumens

아스팔트의 온도를 250℃에서 500℃로 증가시키면 콜로이드와 교질입자의 구조가 변하며, 휘발성물질은 증발하고 잔여물의 유동성은 거의 윤활유와 같은 정도까지 증가한다. 그 다음 아스팔트가 실온까지 냉각되었을 때 다시 경화되나 원래보다 더 잘 부스러지는 경향이 있다. 아스팔트의 점도는 0~50℃에서 $10^3 \sim 10^{20}$ poise의 범위로 높으며, 천연 피치(pitch)의 점도는 0℃에서 5×10^{11} poise, 15℃에서 약 1×10^{10} poise로 알려져 있다. 펌프에 의한 아스팔트의 이송은 약 1000 cSt의 점도에서 이송할 것을 권장하고 있는데 직류 아스팔트 40/50의 경우를 Fig. 1에서 읽어보면 130℃정도 임을 알 수 있다.

아스팔트는 원유 공급원과 처리하는 방법의 특성에 따라서 물리적 성질 및 성분이 변화 될 수 있으며 심지어 같은 유정에서 끌어 올린 원유일지라도 물리적 성질과 성분이 다를 수 있다. 화학적 특성들이 아스팔트 품질을 정의하는데 불충분하므로 주어진 폐기물의 아스팔트 고화처리공정에 적합한 아스팔트 선택에는 Table 4에 있는 표준시험방법을 사용하여 미리 정할 수 있는 물리적 인자를 기본으로 하여야 한다.

- 침입도 (Penetration)

아스팔트의 상대적 단단함 즉, 경도를 나타내는 지표로 100g의 추가 부착된 바늘이 25℃ 실온에서 5초동안 아스팔트에 침투하는 깊이를 mm단위의 10배로 나타낸다.

- 점도 (Viscosity)

적용된 온도에서 아스팔트의 유동학적 특성을 결정하는데 아스팔트의 펌프에 의한 공급, 혼합, 드럼에 채우기 등 아스팔트 고화공정의 최적온도를 결정하는데 중요한 요소이다.

Table 4. Applicable standards for the measurement of bitumen properties

Property	Test		
	ASTM ^a	AFNOR ^b	DIN ^c
Softening point (R & B) ^d	D36	T66.008	52011
Hardness (Penetration)	D5	T66.004	52010
Viscosity	D2171		
Flashpoint	D92	T60.118	DIN ISO 2592
Density	D70	T66.007	52004
Loss of weight on heating	D70	T66.011	52016
Ductility	D113	T66.066	52013

a ASTM: American Society for Testing of Materials.

b AFNOR : Association Francaise de NORmalisation.

c DIN : Deutsches Institut fuer Normung e.V.

d R & B : Ring and Ball test.

- 연화점 (Softening point)

아스팔트가 느린 흐름을 갖기 시작하는 온도를 나타낸다. 아스팔트는 다양한 분자량을 가진 복합체이므로 고체상에서 액체상으로의 전이 온도인 녹는점(melting point)의 명확한 구별이 어렵다. 침입도와 연화점은 아스팔트의 기계적, 유동학적 특성을 나타내며, 가장 보편화된 연화점 측정 방법은 Ring and Ball 방법을 사용한다

- 발화점 (Flash point)

불길이 있는 곳에서 아스팔트를 안전하게 가열 할 수 있는 온도를 나타낸다. 가장 보편화된 발화점 측정방법은 Cleveland open cup test 방법

을 사용한다

아스팔트의 물리적 성질을 세분하여 설명하면 다음과 같다.

가. 비중 (specific gravity)

25℃에서 침입도가 5보다 큰 아스팔트의 비중은 Pycnometer에 의해 측정하며, 5이하의 더욱 단단한 아스팔트의 비중은 hydrostatic balance에 의하여 측정하며 결과는 Table 5에 나타나 있다.

Table 5. Specific gravity of bitumens

Pen. 100 g/5 sec/25℃	Specific density at 25℃
300	1.01 ± 0.02
200	1.02 ± 0.02
100	1.02 ± 0.02
50	1.03 ± 0.02
25	1.04 ± 0.02
15	1.04 ± 0.02
10	1.05 ± 0.02
5	1.07 ± 0.03
< 5	1.07 ± 0.03

아스팔트의 비중은 아스팔트를 생산한 원료인 원유에 주로 의존하고 있으나 일반적으로 Table 5에 나타난 범위안에 놓여 있다. 아스팔트의 비중은 단지 침입도에만 의존하며, 실질적으로 동일한 침입도를 갖는 여러종류(직류아스팔트, 산화아스팔트 등)의 아스팔트에서 동일한 값을 얻었다. 그러나 열분해 잔류물로 얻어진 열분해 아스팔트(cracked bitumen)는 일반적으로 비중이 높다.

일반적으로 아스팔트의 비중은 $0.99\sim 1.2\text{g/cm}^3$ 의 범위에 들며 침입도가 40/50인 아스팔트는 $1.03 \pm 0.02\text{g/cm}^3$ 이다. 기술적 목적과 편리함을 위해 25°C 에서 아스팔트의 비중을 1g/cm^3 으로 사용하고 있다.

나. 부피 팽창계수 (Coefficient of cubical expansion)

부피 팽창계수는 용기 용량의 계산을 위해 냉각상태에서 수축량이 중요한 인자로 작용할 경우에 요구된다. 팽창계수는 $15\sim 200^\circ\text{C}$ 범위의 온도에서 실질적으로 상수이며 모든 아스팔트 (침입도 23~196, $100\text{g}/5\text{sec}$, 25°C)에 대해 거의 동일하다. 팽창계수는 $15\sim 200^\circ\text{C}$ 범위에서 0.00061 ± 0.0001 이다.

다. 비열 (specific heat)

아스팔트의 비열은 $0\sim 300^\circ\text{C}$ 온도 범위에서 선형함수이며 전이점이 없기 때문에 결과적으로 뚜렷한 용융점이 존재하지 않는다. Table 6에서 나타난 것처럼 비열은 온도에 따라 약간씩 변화한다. Table 6의 경우 1°C 당 비열의 변화는 0.00032 이다.

Table 6. Specific of bitumen
(Blown bitumen, penter.40 at 25°C, soft. point 85)

Temp., °C	Specific heat, cal/g.°C
0	0.430
100	0.462
200	0.491
300	0.526

여러형태의 아스팔트에서 1°C당 비열의 변화는 0.00032에서 0.00078까지의 범위로 측정되었다. 모든 아스팔트의 평균 비열은 0.45 cal/g.°C로 생각할 수 있다.

라. 열전도도 (Thermal conductivity)

kcal/m.°C.h로 열전도도를 나타내는 것이 기술적인 측면에서 가장 적합하며 편리하다. 이 단위는 온도구배가 1°C/m 일때 1m² 횡단면적을 통하여 시간당 흐르는 값이며 kcal/m.°C.h 로 표시된 값은 0.00278의 환산인자를 곱하여 cal/cm.°C.sec 단위로 환산할 수 있다. 열전도도는 모든 아스팔트에 대해 실질적으로 같으며, 단지 온도에 따라 10°C당 약 1% 정도 감소한다. 실질적 목적으로 사용하는 열전도도의 값은 0.13kcal/m.°C.hr이다.

마. 수증기의 투과도

물질내의 수증기의 확산계수를 결정하기 위해 Fick의 확산법칙을 사

용할 수 있고 아래의 방정식으로 표현된다.

$$N = \frac{DA t}{X} (P_1 - P_2)$$

여기서 N : 확산하는 물의 양

D : 확산계수 (수증기의 투과도)

A : 표면적

t : 시간

X : 거리

($P_1 - P_2$) : 물의 증기압차

즉, N은 표면적이 A인 횡단면을 X의 거리를 따라 t시간동안 확산 할 수 있는 물의 양이며 $P_1 - P_2$ 는 물의 증기압 차이이다.

이 법칙은 실제로 물을 흡수하지 않는 물질(polystyrene)에도 완벽하게 적용이 된다. 수증기에 대한 아스팔트의 투과도는 확산계수 D로 표현할 수 있다. 만약 Fick의 법칙이 적용된다면 D는 1mmHg의 증기압차에서 표면적이 1cm^2 이고 두께가 1 cm의 층을 통과하여 1 시간동안 확산하는 수증기의 양을 나타낸다. 25°C에서 아스팔트의 확산계수는 1.3×10^{-8} g/cm.hr.mmHg로 나타나 있다. 확산계수는 아스팔트의 침입도와 온도에 의존한다.

바. 표면장력 (Surface tension)

Table 7은 여러가지 온도에서 아스팔트의 표면장력을 dyne/cm 단위로 나타낸 것이다.

Tabel 7. Surface tenstion of bitumens

Temp. °C	Surface tension, dynes/cm
25	33 ± 1 (extrapolated)
100	29 ± 1
120	28 ± 1
150	25.5 ± 1.5

사. 총 표면에너지 (Total surface energy)

총 표면에너지 E_s 는 아래식으로 계산할 수 있다.

$$E_s = \sigma - T \frac{d\sigma}{dT}$$

σ = 표면장력

T = 절대온도

다양한 아스팔트에 대하여 총표면에너지의 값은 $51 \pm 1 \text{ erg/cm}^2$ 를 사용한
다.

아. 저항/전도도 (Resistivity/conductivity)

아스팔트는 높은 저항 즉, 낮은 전기전도도를 가지므로 좋은 절연물
이다. 전기전도도 값의 차이가 실질적으로 중요한 의미를 가지지는 않지
만 단단한 아스팔트가 부드러운 아스팔트보다 더 작은 전기전도도를 갖는
다. 모든 아스팔트의 전기저항은 온도가 증가함에 따라 감소한다. 실질적

인 전기저항의 값은 다음과 같다.

Temp.(°C)	Resistance (ohm/cm)
30	10^{14}
50	10^{13}
80	10^{12}

자. 절연성의 세기 (Dielectric strength)

절연성의 세기는 kV/mm로 측정되고 측정조건과 전극의 형태에 의존한다. 단단한 아스팔트는 부드러운 아스팔트(침입도가 높은 아스팔트)보다 더 높은 절연 강도를 갖는다. 모든 아스팔트의 절연강도는 온도가 증가하면 감소한다.

(a) 침입도 170/200인 아스팔트

Temp.(°C)	절연강도(kV/mm, 평판 전극사용)
20	10
50	5

(b) 단단한 아스팔트 (hard bitumen)

Temp.(°C)	절연강도(kV/mm, 평판 전극사용)
20	30~60
50	10~20

차. 기계적, 유동학적 성질 (Mechanical and rheological properties)

아스팔트는 점성액체로서 또는 신축성 있는 고체로 행동하며, 이 두 가지 형태사이의 중간적 행동도 관찰된다. 아스팔트는 열가소성이며 다양한 기계적 작용을 받기 쉽다. 이러한 성질은 원유의 상태와 증류공정의

과정에서 첨가하거나 아스팔트에 남아 있는 용매에 의해 영향을 받는다. 변형에 대한 기계적 저항성의 척도는 절대점도 단위인 poise로 측정될 수 있다. 아스팔트에 있어서 흐름은 순수액체 또는 뉴튼유체의 흐름에서 이탈하는 것이 일반적이며 소성(plastic)적 행동의 다양한 형태가 발견 된다. 어떤 상태하에서는 아스팔트에 탄성(elasticity)이 나타나는데 뉴튼유체 또는 의가소성 뉴튼유체에서 탄성은 렌트켄 효과 또는 충격에 대한 반작용으로서 나타난다. 이런 영향은 실질적 사용에서 다양하게 적용된다. 렌트켄 효과는 특히 동적인 충격이 높은 도로에서의 이용에 중요하다.

아스팔트의 가장 중요한 특성은 흐름 또는 유동학적 성질이다. 아스팔트는 순수한 점성적 흐름특성을 가지는 것과 소성적 흐름특성을 가지는 것으로 나눌 수 있다. 소성적 아스팔트(plastic bitumen)는 아스팔텐을 더 많이 함유하고 점성적 아스팔트(viscous bitumen)에서 만큼 잘 분산되지 않는다. 경험적인 실험이 아스팔트의 흐름특성을 측정하는데 이용되고 있으며, 가장 중요한 실험은 침입도와 연화점이다. 침입도와 경도는 서로 관련이 있는데 예를들면 침입도가 낮을수록 경도(hardness)는 더욱 더 커진다. 아스팔트는 침입도가 5 또는 그 이하에서 부터 300 이상까지 다양하게 침입도 등급을 생산한다. 침입도와 연화점은 아스팔텐 함유량과 관계가 있으며 점성적 아스팔트의 점도는 직접 측정하기는 어렵지만 아래식에 의하여 침입도로 부터 대략적인 값을 얻을 수 있다.

$$\text{점도(poise)} = \frac{5.31 \times 10^9}{(\text{침입도})^{1.93}}$$

다양한 목적에 비해 순수한 점성적 흐름특성을 지닌 아스팔트는 적용성이 만족스럽지 못하다. 가장 단단한 점성적 아스팔트조차 작은 압력에도 시간이 지남에 따라 흐름이 있을 수 있다. 지붕을 이는 아스팔트는 흐름을

야기시키는 지붕의 경사때문에 작은 중력에 저항할 수 있는 소성적 아스팔트(plastic bitumen)을 쓰는 것이 좋은 예이다. 점성적 아스팔트에 공기를 불어 넣어 산화시킴으로서 소성적 아스팔트를 만들어 낸다. 이것은 수지성 분산매체의 함유량을 감소시키고 아스팔텐 함유량을 증가시킨다.

아스팔트의 압축성은 아스팔트-폐기물 고화체의 땅속 매립에 중요한 요소가 된다. 압력하에서 일정량의 순수 아스팔트의 부피변화는 온도에 따른 부피변화와 비교하여 상대적으로 적다. 아스팔트의 압축성은 $40 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{kg}$ 이고 1°C 당 열팽창계수가 600×10^{-6} 이므로 온도 1°C 하강에 따른 부피변화는 압력에서 15 kg/cm^2 상승에 따른 부피변화량과 같다.

아스팔트 점도에 대한 압력의 영향은 아스팔트 형태에 의존하고 그 영향은 매우 클 수 있다. 뉴튼유체 처럼 행동하는 아스팔트에 1000 kg/cm^2 의 압력을 적용하면 점도는 10^5 또는 그 이상의 인자에 의해 증가한다.

어떤 형태의 첨가제(filler)의 첨가는 sol형태의 아스팔트에 구조물을 형성케하여 상승된 온도에서도 흐름을 방지하기에 충분한 응력을 가지며, 또한 낮은 온도에서 아스팔트 생성물은 느리긴 하지만 상당한 변형이 가능하도록 충분한 유연성을 지닌다. 유화체로 콜로이드성 점토를 함유하는 유화 아스팔트는 건조됨에 따라 아스팔트 구조물을 형성하는데 아스팔트에 대한 filler 구조물의 좋은 예가 된다. 콜로이드성 점토(bentonite)는 1.5 vol.%의 적은 양으로 아스팔트층에 벌집골격을 형성하여 100°C 이상의 온도에서도 수직표면의 흘러내림을 방지한다. 아스팔트 생성물의 높은 기계적 저항성은 도로포장 혼합물처럼 광물질 혼합재와 아스팔트를 혼합하므로써 얻어진다. 아스팔트-고체 혼합물에 요구되는 기계적강도는 아스팔트의 점도와 아스팔트내에 혼합된 무기물질의 양과 구조의 적절한 조화에서 실현된다.

하. 신도와 부스러짐 (Ductility and brittleness)

다양한 실험이 신도와 부스러짐을 규명하기 위해 제안되었다. 신도 실험은 1903년 초기에 이미 Dow에 의해 제안되었는데 횡단면적이 1cm^2 으로 가운데가 좁게 된 아스팔트 시료를 25°C 항온조에서 $5\text{cm}/\text{min}$ 의 속도로 확장시키도록 되어 있다[13]. 이런 조건하에서 대부분의 도로포장용 아스팔트는 거의 100cm 를 초과하는 매우 높은 신도를 나타낸다. 탄력성 있는 sol형태 아스팔트는 온도상승에 따라 신도가 더욱 규칙적이고 증가한 값을 갖는데 반하여, gel형태 아스팔트는 온도에 거의 영향을 받지 않는다. 신도는 아스팔트의 유동특성과 밀접한 관계가 있다.

부스러짐의 정도는 아스팔트의 사용에 중요한 의미를 갖는다. 아스팔트의 부스러짐은 온도와 변형속도에 영향을 받는다. 그러므로 부스러짐의 정도는 주어진 조건하에서 일어나는 파손을 온도에 의해 표현되어진다. Fraass에 의해 개발된 방법은 유럽에서 폭넓게 사용되고 있는데 천천히 뒤를 때 아스팔트의 길고 가는 조각이 깨지는 온도에 의해 결정된다.

타. 방사선 저항성[14]

방사성폐기물의 아스팔트고화처리에서 α , β , γ 방사선에 대한 아스팔트 고화매질의 안정도는 결정적 중요성을 갖는다. 특히 안전하게 저장할 수 있는 아스팔트 매질내 최대 방사능양에 대한 문제로 귀착된다.

다양한 방사선원으로 내부와 외부에서 $1\sim 700\text{ rad}/\text{sec}$ 선량률로 조사했을 때 아스팔트 물질의 방사선 저항성에 대한 연구는 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 총 선량이 10^9 rad 이하라면 아스팔트는 충분히 안정성을 갖는다.
- 10^8 rad 흡수시 아스팔트 1g 당 약 $0.5\sim 1\text{cm}^3$ 의 H_2 발생 (25°C , 1기압)
- 10^{10} rad 이상의 선량을 흡수한 아스팔트는 화학적구조가 파괴된다.

- 수소, 메탄, C_2H_x , C_3H_x , C_4H_x , CO의 발생
 - 방사분해 가스에 의해 부피증가
 - 연화점 상승
 - 탄성의 증가
 - 약간의 신도증가
 - 침입도 감소
 - 아스팔텐과 수지의 증가
 - 발화점 감소
- 10^7 rad의 조사는 단지 아스팔트 성질의 최소변화만을 일으킨다.
 - 총 조사선량이 같을 때 선량율이 감소하면 아스팔트 변화량도 감소한다.
 - 10^8 rad 이상의 선량에서 아스팔트가 단단해진다.
 - 방사선 분해에 기인한 부피증가는 산화아스팔트가 직류아스팔트보다 적다.

2.1.5 절에서 언급해온 아스팔트의 물리적 성질을 요약하면 Table 8과 같다.[15]

Table 8. Physical properties of Bitumen

Property	Value
Specific density	$1.04 \pm 0.03 \text{ kg/} \ell \text{ (at } 25^\circ\text{C)}$
Coefficient of cubical expansion	$6.1 \times 10^{-4} \text{ }^\circ\text{C}^{-1} \text{ (in the range } 15 \sim 200^\circ\text{C)}$
Specific heat	$1.88 \text{ J} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$
Thermal conductivity	$0.54 \text{ kJ} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{ }^\circ\text{C}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$
Permeability of H ₂ O vapour	$9.75 \times 10^{-11} \text{ g} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{Pa}^{-1} \text{ (at } 25^\circ\text{C)}$
Surface tension	$(29 \pm 1) \times 10^{-3} \text{ N/cm (at } 100^\circ\text{C)}$
Total surface energy	$51 \pm 0.1 \text{ } \mu\text{J/cm}^2$
Resistivity / conductivity	$10^{14} \Omega \cdot \text{cm (at } 30^\circ\text{C)}$
Dielectric strength	$20 \sim 30 \text{ kV/mm (at } 20^\circ\text{C ; flat electrodes)}$
Dielectric constant	$2.7 \text{ (at } 20^\circ\text{C)}$
Dielectric loss	$0.015 \tan \delta \text{ (50 Hz ; } 20^\circ\text{C)}$
Viscosity	$10^5 \sim 10^{20} \text{ P (in the range } 50 \sim 0^\circ\text{C)}$
Heat combustion	$4.2 \times 10^4 \text{ J/g}$
Compressibility	$\approx 4 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{kg}$
Permeability of H ₂ diffusivity	$\approx 3 \times 10^{-12} \text{ g} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{Pa}^{-1} \text{ (at } 25^\circ\text{C)}$

6. 아스팔트의 장기 거동

대기 영향하에서 아스팔트 수명에 대해서는 오래전부터 알려져 있으나 철저하게 조사되지는 않았다. 악조건하에서도 대부분의 아스팔트 구조물이 오랜 수명을 가지고 있다는 사실에 의심할 여지는 없다. 지난 20~30년 동안 노화현상에 대해 많은 관심이 집중되었는데 특히 보호피막, 아스팔트 페인트 도로구조물, 최근에는 아스팔트고화된 방사성폐기물의 장기 저장에 관련하여 관심이 모아졌다. 아스팔트의 노화(ageing)는 접촉하는 물, 공기속에 존재하는 불순물, 혼합한 고체의 종류등과 같은 여러인자에

의해 영향을 받는다.

아스팔트 노화 이외에 아스팔트의 장기간의 안정성과 거동에 대하여 고려될 필요가 있는 두가지 인자는 다음과 같다.

- 아스팔트와 접촉하는 물질과의 반응
- 미생물학적 분해 가능성

폐기물의 피막물질로서 사용하는 관점에서 아스팔트의 장기간의 안정도에 대해 중요한 인자들을 언급하면 다음과 같다.

가. 아스팔트의 내구성

(1) 물리적 경화

아스팔트는 탄화수소 혼합체내에 수지(방향족, 이온화물질)에 의해 무거운 성분들이 콜로이드화 되어진 콜로이드체계를 이루고 있다. 적용된 온도에서 대기온도로 콜로이드체계가 냉각되면 흡수평형이 더 크게 뭉쳐지는 방향으로 이동하며 그다음에 점도가 높아진다. 이런 현상이 물리적 경화로 분류되며, 높은 점도 때문에 새로운 평형으로의 이동은 수개월이 걸릴 수 있는 느린 공정이다. 물리적 경화의 또다른 원인은 아스팔트가 냉각될 때 천천히 결정화되는 파라핀 왁스의 존재일 수도 있다. 대부분의 경우, 이 과정은 앞에 언급된 공정보다 빠르다. 두 공정 모두 아스팔트의 재가열로 복원되며 원래의 점도로 되돌아 간다. 물리적 경화의 세번째로 가능한 원인은 휘발성 물질의 증발이다. 증발속도는 휘발성분의 성질과 양에 의존하며, 또한 노출조건 즉, 노출될 때의 온도에 의존한다. 이러한 결과로 오는 손실은 아스팔트의 형태에 따라 상당히 변하는데 아스팔트 형태는 말뚝 분자량의 분포에 의존한다. 보통 상업적 아스팔트는 이러한 원인에 의해 감지할 수 있을 정도로 경화하지 않는다. 예를들면 60℃로 14일 동안 가열후 아스팔트의 점도가 증가하는데 세번째 인자에 의

한 증가이다.

(2) 화학적 경화

다른 많은 유기물처럼 아스팔트는 대기중 산소와 접촉할 때 천천히 산화한다. 형성된 이산화 산소를 함유한 기는 교질입자(micelle)와 결합하는 경향이 있고 따라서 아스팔트의 점도는 상당히 증가한다. 빛의 유무에 따라 화학적 경화를 구별할 필요가 있으며, 빛이 있는 곳에서의 산화반응은 없는 곳에서 산화반응보다 빠르게 진행된다. 함유된 산소는 주로 CO기로 존재하고 나머지는 CO₂, H₂O로 사라진다.

빛이 없을때 산화반응하는 모든 산소는 짧은 시간 후 (1주) SO 기로, 오랜 시간 후 (1년이상) CO 기로 결합한다.

빛이 존재할때 아스팔트의 산화(aging)는 자외선에 의해 활성화 된다. 빛의 존재시 산화는 약 5 μ 의 깊이로 제한되나 실제로 산화(aging)는 더 깊은 곳의 물질에 영향을 준다. 왜냐하면 장기간에 걸쳐 형성된 표면은 쪼개지고 분말물질로 분해되어 비바람에 제거됨으로써 새로운 표면이 햇빛에 노출된다. 그러나 도로구조물의 내구성에 대해서는 이런 현상이 별로 중요치 않은데 형성된 도로표면은 매우 단단하고 벤젠에 불용성이기 때문이다.

폐기물 관리분야에서 아스팔트의 적용은 어두운 곳에서 산화(aging)가 경화의 원인으로 생각할 수 있다. 어두운 곳에서의 산화는 두가지 메커니즘에 의해 결정된다.

- 확산에 의한 산소전달
- 반응에 의한 산소소비

빠른 확산과 느린 반응은 산소의 침입을 깊게 하는데, 직류아스팔트 50/60에 대해 아래의 값이 얻어졌다.

- 산소 확산계수 : $1.2 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{sec}$ (50℃에서)
- 아스팔트내 산소의 용해도 : $0.10 \text{ cm}^3/\text{cm}^3.\text{atm}$ (50℃에서)

산소에 대한 아스팔트의 반응성은 형태, 온도에 따라 변하며, 30~50℃ 범위에서 온도는 경화 메카니즘에 아주 적은 영향을 미친다. 산소침투의 최고 깊이가 2.5~5mm의 범위내인 것을 실험적으로 또한 계산에 의해 밝혀졌다. 그러나 장기간에 걸쳐 산소침투의 깊이는 어느정도 증가할 것이다. 대부분의 아스팔트는 산화의 형태를 감지할 수 있는 차이로 나타나는 경우는 거의 없다.

나. 다양한 물질과의 반응

폐기물 고형분과 고화매질인 아스팔트가 접촉하여 시간이 지남에 따라 아스팔트의 특성이 변화할 가능성은 고려되어야 한다. 혼합된 고형분의 함유물질과의 접촉 이외에도 아스팔트는 오랜기간 매립되어 있는 동안에 공기, 방사분해가스인 수소, 지하수, 주변의 매체, 인간이 만든 구조물 등과 접촉할 수 있다. 일상적 매립저장온도와 압력에서 이러한 물질과 아스팔트와의 반응 자료로 부터 얻어진 결론은 아스팔트의 표면 근처에서 영향을 받아 아스팔트의 보호피막물질로서의 기능을 위태롭게하지는 못한다는 것이다. 아스팔트 피막에 의한 투과억제의 정도는 다음과 같은 인자에 의존한다.

- 아스팔트 피막층의 밀집도
- 아스팔트를 통과하는 물(증기)과 공기의 확산속도
- 혼합된 물질의 성질

물이 균일한 아스팔트층을 통과할 때 아주 적은 양의 물이라는 두가지 이유는 다음과 같다.

- 첫째, 아스팔트 안에 물의 용해도는 매우 낮다.(0.001~0.01% 정도)

- 둘째, 아스팔트의 점도는 일반 대기온도에서 매우 높다.

아스팔트가 상당한 양의 염의 용액방울 또는 물을 흡수하는 입자를 함유한다면 물의 투과도는 증가할 것이다. 물과 산소에 대한 아스팔트의 확산계수는 각각 10^{-8} g/cm.hr.mmHg 와 10^{-10} g/cm.hr.mmHg 정도이며, 고화매질인 아스팔트의 보호효율성은 아스팔트내에 물을 흡수하지 않는 (hydrophilic) 물질의 존재와 아스팔트 고화체의 pinhole이나 균열의 존재에 의존한다. 중류아스팔트는 같은 침입도의 산화아스팔트 보다 더 적은 물을 투과시킨다. 수도물과 접촉한지 10년후 5mm 두께의 산화아스팔트 층은 3~4% 물을 흡수하며, 더욱 단단한 아스팔트(H 80/90, H 110/120)는 1% 이하의 물을 흡수한다.

다. 미생물학적 분해[16,17,18,19]

1972년에 Drent는 "아스팔트 물질에 대한 미생물의 영향"에 대한 보고를 했다. 1978년에는 "방사성폐기물 관리와의 관계에 대한 요약과 아스팔트의 미생물학적 분해의 조사"가 Zobell과 Molecke에 의해 출간되었다. 실제적으로 모든 종류의 아스팔트는 박테리아나 곰팡이에 의해 매우 느린 속도에서부터 매우 빠른 속도까지 다양한 속도로 생분해 될 수 있다. 생분해의 속도는 아스팔트에 대한 미생물 효소체계의 접촉, 아스팔트의 화학적 성분, 물리적 상태, 환경조건등에 영향을 받는다. 폐기물의 아스팔트 고화처리 온도 즉, 80~200℃ 범위는 폐기물 자체에 함유하고 있는 대부분의 박테리아나 곰팡이를 죽이기에 충분한 온도이다. 그러나 외부로부터 박테리아에 의한 아스팔트고화체의 분해는 아직도 상당히 가능성을 지닌다.

대부분의 토양 박테리아와 수생 박테리아는 pH 6~8의 범위에서 가장 잘 성장한다. 아스팔트의 미생물 분해에 가장 좋은 조건하에서도 분해속

도는 일반적으로 매우 느리다. 분해속도는 아스팔트의 단위무게당 산화된 물에 노출된 표면적의 비율로 나타낸다. Pseudomonas 종에 의한 아스팔텐과 탄화수소의 생분해는 미생물유화제나 표면활성제에 의해 촉진된다는 것이 밝혀졌다. 캐나다 Ontario의 아스팔트 퇴적물에서 분리된 새로운 미생물종인 pseudomonas asphaltenicus는 아스팔텐을 포함한 폭넓은 탄화수소를 활용하며 미생물 번식의 가장 높은 온도는 약 100℃이다. 또한 몇몇 미생물종은 60℃보다 높은 온도에서 오랫동안의 노출에도 생존한다. 산소가 없을 때 아스팔트가 미생물에 의해 공격을 받을지는 단적으로 결정을 내릴수는 없지만 어떤 혐기성 미생물이 아스팔트를 공격한다면 분해속도는 호기성분해보다 더 느릴 것이다.

도로포장 아스팔트의 어떤 물리적 성질이 대기온도에서 몇주내에 미생물의 활동에 의해 변화되었다는 것이 Harris에 의해 증명되었으며, 그는 아스팔트로 피복한 매장된 파이프 주위의 토양에 미생물군이 일정하게 증가하고 코올타르(coaltar)로 피복한 둘레에는 미생물의 성장이 없다고 보고했다. 주로 pseudomonads, corynebacteria, actinomycetes 등이 아스팔트 분해에 관련하고 있다. 존재하는 박테리아 종류와 여러가지 환경조건에 따라서 아스팔트의 파라핀은 아스팔텐의 heterocyclic 화합물보다 더 공격을 받기 쉽다.

폐기물을 고화하는 매질로 아스팔트를 사용하는데 관련된 문헌으로 부터 유추할 수 있는 결론을 요약해 보면 다음과 같다.

- 자연에 널리 존재하는 미생물은 호기성 조건하에서 아스팔트를 공격할 능력이 있다.
- 일반적으로 미생물공격을 받기 쉬운 순서는 직류아스팔트, 산화아스팔트, 코올타르 순이다.
- 미생물 활동을 억제하는 물질의 사용과 효과에 대해 거의 알려진 것

이 없다.

- 아스팔텐, 수지, 파리핀 탄화수소, naphthenic 탄화수소, 방향족 탄화수소와 같은 아스팔트 성분은 미생물효소에서 보다 강산, 강알카리 같은 화학물질에 더 내구성을 지닌다.
- 아스팔트를 공격하는 몇 미생물종은 토양이나 원유와 접촉하고 있는 바닥 침전물에 많이 존재한다.
- 미생물이 아스팔트를 공격하는 속도는 매우 느려 최적조건하에서도 3년동안 영향을 미치는 아스팔트의 두께는 0.025mm 이다.
- 미생물에 의해 감지할 수 있는 손상을 만드는데는 매우 오랜기간 동안 최적의 조건이 조성되어야만 한다.
- 미생물이 폐기물의 아스팔트 피막을 파괴할 수 있는 가능성은 극히 적다.

아스팔트의 오랜기간 동안의 거동에 대한 종합적 결론은 원자력분야와 비원자력분야에서 아스팔트의 사용은 아스팔트의 유리한 물리화학적 특성과 내구성을 기본으로 하고 있다. 여러가지 아스팔트는 특히 산화 안정성에 관하여 아스팔트 생산 방법과 원유의 공급원에 따라서 차이를 보인다. 매립지 땅속 환경에서 수백만년을 넘는 입증된 자연적 안정도는 인공적인 물질보다 실질적으로 우세한 것으로 간주할 수 밖에 없다.

7. 방사성폐기물 처리에 사용되는 아스팔트

아스팔트의 분류에서 이미 언급된 바와같이 아스팔트는 제조방법에 따라 세분화될 수 있다. 방사성폐기물 처리에 사용되는 아스팔트는 주로 원유의 증류공정으로 분류된 직류아스팔트와 산화아스팔트이다. 아스팔트의

선택은 아스팔트고화체의 안정성에 관련된 특성 즉, 침출저항, 방사선에 대한 영향 등과 아스팔트 고화장치의 특성에 따라 고려될 수 있다. 아스팔텐 함유량이 높은 산화아스팔트는 직류아스팔트 보다 방사선 영향과 산화 반응에 덜 민감하며, 침출저항성은 직류아스팔트가 상당히 좋아서 침출률이 낮다. 아스팔트 고화장치의 특성은 아스팔트 고화처리 온도 범위에서 직류아스팔트의 점도가 산화아스팔트 점도보다 낮기 때문에 구속을 적게 받는다. 따라서 뜨거운 아스팔트-폐기물 혼합체가 중력에 의존하여 흐르내리는 박막교반증발기 형태에는 직류아스팔트가 사용되며 기계적 힘에 의존하는 압출기 형태(extruder)에는 주로 산화아스팔트가 사용된다. 아스팔트는 사용용도의 대부분을 차지하는 도로 포장용으로 제조되며 제조회사들이 고유의 상품명으로 제품을 시판하고 있다. Table 9는 아스팔트 제조회사인 Shell사의 아스팔트 상품의 물리적 특성을 나타낸 것이다.

Table 9. Characteristics of "Shell" Bitumens

REFINED BITUMENS	TYPE	Specific density at 25°C Kg/ℓ	Ring and Ball softening point °C	Penetration at 25°C 100 g/5s Nd. No 2 0.1 mm	Ductility at 25°C cm	Solubility in CS ₂ wt%	Flash p. Cleveland open cup °C
Spramex	280/320	0.99-0.14	33-38	230-320	> 100	> 99	> 200
Spramex	180/200	1.00-1.05	37-48	180-200	> 100	> 99	> 200
Mexphalt	80/100	1.01-1.05	45-52	80-100	> 100	> 99	> 225
Mexphalt	60/70	1.01-1.06	48-55	60-70	> 100	> 99	> 250
Mexphalt	50/60	1.01-1.06	50-58	50-60	> 100	> 99	> 250
Mexphalt	40/50	1.01-1.06	52-60	40-50	> 100	> 99	> 250
Mexphalt	20/30	1.02-1.07	59-69	20-30	> 30	> 99	> 250
Mexphalt	10/20	1.02-1.07	65-75	10-20	> 5	> 99	> 250
BLOWN BITUMENS							
Mexphalt	R75/30	1.01-1.06	70-80	25-35	> 2	> 99	> 200
Mexphalt	R85/25	1.01-1.06	80-90	20-30	> 2	> 99	> 200
Mexphalt	R85/40	1.01-1.05	80-90	35-45	> 2	> 99	> 200
Mexphalt	R95/15	1.01-1.06	90-100	10-20	> 2	> 99	> 200
Mexphalt	R110/30	1.01-1.06	105-115	25-35	> 2	> 99	> 200
Mexphalt	R115/15	1.01-1.06	110-120	10-20	2	> 99	> 200
HARD BITUMENS							
Mexphalt	H80/90	1.03-1.08	80-90	6-12	-	> 99	> 320
Mexphalt	H110/120	1.04-1.09	110-120	3-7	-	> 99	> 320
Mexphalt	135-10	1.02-1.07	130-140	7-12	> 1	> 99	> 200
Mexphalt	155-7	1.02-1.07	150-160	5-10	-	> 99	> 200

제 2 절 아스팔트 고화

폐기물의 안정화 방법으로 사용되는 고화처리는 크게 저온고화법과 고온고화법으로 나눌 수 있다. 세분하면 저온고화법은 시멘트고화, 아스팔트 고화, 석회-포졸란고화 등이며 1000℃ 이상의 고온이 요구되는 고온고화는 소결고화와 용융고화로 나눌 수 있는데 소결고화는 유리화, 세라믹고화, 유기체 중합법 등이 있고 용융고화는 용융방법에 따라 연료에 의한 용융, 전기에 의한 용융, 마이크로파에 의한 용융, 플라즈마에 의한 용융등으로 구분된다. 저온고화의 고화매질에 따른 분류는 다음과 같다.

Inorganic Based System	Organic Based System
portland cement	bitumen
soluble silicates-cement	urea formaldehyde
pozzolan-lime	polybutadiene
pozzolan-cement	polybester
clay-cement	epoxy
gypsum	polyethylene

중.저준위 방사성폐기물에 대한 가장 널리 사용되는 고형화는 시멘트로 고화하는 것이다. 그러나 지난 이십여년에 걸쳐 다수의 아스팔트 고화장치 개발되었다. 아스팔트고화 공정은 주로 유럽에서 응용되어 왔는데 벨기에, 독일, 프랑스등은 재처리폐기물처리에 경험이 많으며 핀란드, 스웨

덴 등은 원자력발전소 폐기물에 대해 경험이 많다. 최근에는 아스팔트고화 공정이 유럽뿐만 아니라 여러나라에서 적용이 되고 있다.

원자력발전소와 재처리공장에서 발생하는 중.저준위폐기물 즉, 이온교환수지와 필터보조제 등 고체폐기물과 액체폐기물은 거의 아스팔트고화처리를 할 수 있다. 아스팔트고화처리는 비교적 처리되는 폐기물의 형태에 영향을 받지 않으며 처리공정은 연속식(extruder와 thin film evaporator)과 회분식(pot형)으로 운전된다.

액체폐기물의 아스팔트고화는 증발혼합공정이며, 이온교환수지 및 침전슬러지등 건조시킨 고체폐기물의 아스팔트고화는 혼합공정이라 할 수 있다. 액체폐기물의 아스팔트고화 하는 장치는 다음과 같은 사항을 만족시켜야 한다.

- 액체의 증발
- 아스팔트와 건조염을 균일하게 혼합
- 미세한 염의 입자 크기

이러한 조작들은 처리와 고화체의 관점에서 가능한 짧은 시간과 낮은 온도에서 수행되어야 한다. 이러한 방법이 아스팔트 오일성분의 증발을 줄일 뿐 만아니라 발열반응의 위험도 감소시킨다. 앞에서 언급한 것 이외에 온도와 시간을 제한하는 여러인자들이 있는데 즉, 고화체는 일정한 조건들을 만족시켜야 한다. 이것은 아스팔트 질과 온도의 선택이 다소 제한되어 있다는 것을 의미한다. 온도의 선택에 영향을 주는 다른 인자는 최종 고화체의 염 함유량과 증발되어 나가는 물의 양이다. 또 다른 주요변수는 시간인데 온도를 낮추는 것과 동일한 장점을 가진 시간은 장치를 효율적으로 사용하기 위해 제한된다. 모든 인자를 고려해 볼 때 실제 운전 온도는 가열표면에서 체류시간이 매우 짧은 경우 200~230℃ (박막증발기), 체류시간이 긴 경우 일반적으로 200℃ (압출기형 증발기)를 초과하지 않는

다.

아스팔트 고화체는 고휘분 함량이 80 wt%까지 할 수 있으나 고화체의 내구성, 안정성 등 일정조건과 고화장치의 특성에 따라 40~60 wt%를 함유하는 고화체를 생산 하고 있다.

1. 고화처리기술과 고화공정

방사성폐기물의 아스팔트고화를 위해 개발된 기술은 3가지로 나눌 수 있는데 요약하면 다음과 같다.

가. 영국, 벨기에, 서독등에서 개발된 기술

- 160~230℃ 온도에서 물과 고휘발성 성분이 동시에 증발되면서 액체 또는 고체 방사성폐기물이 용융된 아스팔트와 혼합

- 처분을 위한 용기에 혼합물 포장

이 공정은 산업적 규모로 여러해에 걸쳐 적용이 성공적으로 입증된 유일한 아스팔트 고화공정으로 적은 양의 증발농축액과 슬러지를 동시 처리하는 것이 유리하며 처리온도가 다소 높은 것이 불리한 점이다. 아스팔트의 낮은 열전도도와 열확산 때문에 가열표면이 클 필요가 있으며, 온도가 어떤 제한치 이상 올라가면 아스팔트 표면에 단단한 외피(탄화)가 형성되고 이것은 열교환을 더욱 어렵게 만들기 때문에 좁은 온도범위내에서 일정한 온도를 유지할 필요성이 있다. 또한 아스팔트매질의 과도한 과열은 아스팔트의 물리적 화학적 변화를 야기시킬 수 있다.

나. 미국에서 개발된 기술

- 실온에서 유화된 아스팔트에 액체 또는 고체 방사성폐기물을 혼합

- 물과 고휘발성 성분 증발시키기 위해 혼합물을 가열

- 처분을 위한 용기에 혼합물 포장

이 공정의 매력적인 특징은 실온에서 쉽게 흐르는 유화아스팔트를 사용한다는 점이며 낮은 온도에서의 증발은 아스팔트의 퇴화를 최소화하고, 비교적 낮은 교반율로 적절한 혼합이 되며, 회분식 또는 연속식으로 운전이 가능하다. 이 공정의 단점은 비교적 높은 고화온도이므로 냉각과정 동안 고형분의 침전이 일어나고 NO_3 와 NO_2 를 함유하는 폐기물에 대해서는 적절하지 못하다.

다. 불란서에서 개발된 기술

- 슬러지, 유화제 및 아스팔트의 혼합
- 혼합된 물질로 부터 방출된 물의 분리
- 드럼에 봉인하기전 피막된 물질의 완전한 탈수

이 공정은 많은 잇점을 가지고 있는데 다양한 함수율(40~90%)을 가지는 슬러지와 콜로이드형, 결정형등 다른 형태폐기물의 조성을 조절할 수 있고, 계면활성제 (유화제) 비율을 조절하여 피막을 입히는 융통성 있는 공정이다. 단점은 산업적 현장에 적용하기에 비교적 비용이 높으며 계면활성제의 존재는 물의 흡수를 증가시키며 결과적으로 침출율을 높이게 된다.

현재 상업화 되어 원자력 발전소나 재처리시설의 폐기물처리에 적용되고 있는 기술은 유화아스팔트나 유화제를 사용하지 않는 영국, 벨기에, 독일등에서 개발된 기술 이 대부분을 차지하고 있다.

가열혼합장치에 의한 분류는 크게 세가지로 나눌 수 있는데 Fig. 2와 같다.

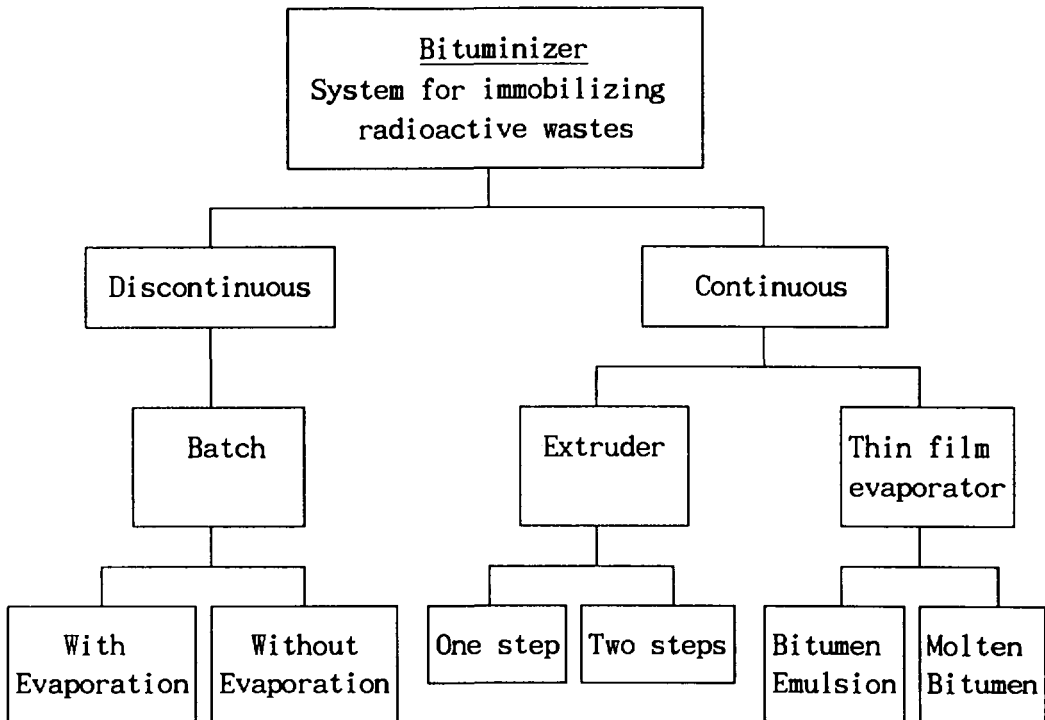


Fig. 2. Classification of bituminization systems

가열혼합장치의 세가지 형태는 사업적으로 사용되어 왔는데 요약하면 아래와 같다.

- (1) pot형은 가열맨틀 또는 내부에 가열장치가 있는 용기(vessel)로 회분식 공정으로 운전되며 드럼식 혼합기도 일종의 pot형에 속한다.
- (2) 2개 또는 4개 스크루우를 가진 압출형 증발기(직경 $\phi=83\sim 120\text{mm}$)는 연속식 공정으로 폐기물과 아스팔트를 균일하게 혼합하며 동시에 물을 증발시키고 혼합물을 드럼으로 밀어낸다.
- (3) 박막증발기는 아스팔트와 액체 또는 액체상에 섞여 있는 작은 입자의 고체물질을 연속적으로 혼합하여 동시에 물이 증발하고 중력에 의해 혼합물이 벽면을 따라 흘러 드럼에 떨어진다.

pot형 장치는 기본적인 혼합기를 가진 용기로 매우 단순하다. 열효율이 좋지 않으므로 폐기물의 수분이 적을수록 작업시간을 절약할 수 있으며, 공정은 회분식으로 조작되어야 한다. 열효율을 좋게 하기 위하여 교반 프로펠러내에도 열전달 매체를 흐르도록 고안한 것이 일본의 드림식 혼합기이다. Fig. 3은 벨기에 Mol에서 사용하고 있는 pot형 고화장치이며, Fig. 4는 일본에서 사용하고 있는 드림식 고화장치를 나타낸 것이다[20, 21].

불란서에서 1960년대에 처음 사용된 박막증발기는 매우 높은 수분증발율을 가지며 효과적인 열전달은 짧은 체류시간을 가능하게 한다. 이 방식은 원자력발전소 폐기물의 처리에 이용되고 있는데 Fig. 5는 박막증발기형 아스팔트 고화장치이다. Fig. 6은 한국 원자력연구소에 있는 박막증발기형 아스팔트고화 공정도이다.

또 다른 방식의 하나는 높은 농도의 염을 처리할 뿐만아니라 혼합과 반죽을 균일하게 하는 압출형증발기이다. 이 장치는 혼합물을 밀어내기 위해 2-4개의 스크루우를 가진 스텝가열체로 구성되어 있으며 혼합물을 교반할 수 있도록 스크루우 위에 부채꼴 모양의 톱니바퀴가 있다. 압출형증발기는 균일한 고화체를 요구하는 특히 높은 방사능과 긴반감기인 고농도의 염이 발생하는 재처리시설에서 주로 많이 사용된다. Fig. 7은 운전되고 있는 압출기형증발기의 아스팔트고화 공정도를 나타낸 것이며, Table 10은 1991년까지 각국에서 사용하고 있는 아스팔트고화와 처리하고 있는 폐기물의 형태를 나타낸 것이다[22].

미국의 ATI(Associated Technologies, Inc.)회사는 새로운 TVR-III(Transportable Volume Reduction) 계획을 세우고, 박막증발기형 아스팔트 고화장치를 대형 트레일러에 장착하여 1986년부터 각 원자력발전소로 이동하면서 폐기물 처리를 시작하였다[23,24].

가열혼합장치의 세가지 형태의 장.단점을 요약하면 아래와 같다.

(1) Pot 형

○ 장 점

- 공정이 매우 단순
- 대상 폐기물의 조성, 상태에 폭넓게 적용

○ 단 점

- 열효율이 적음
- 연속처리가 되지 않음

(2) 압출기형(Extruder)

○ 장 점

- 고화체의 균일성이 좋음
- 가동의 유연성
- 산화 아스팔트의 고점도에 이용 적합
- 연속적 처리

○ 단 점

- 기계적 복잡성
- 제한된 증발용량
- 높은 경비
- 대상 폐기물에 큰 이물질이 있으면 기계적 손상

(3) 교반기 박막증발기(Thin filme evaporator)

○ 장 점

- 기계적 단순성
- 질산으로 쉽게 세염 가능
- 빠르고 쉽게 조정

○ 단 점

- 가동 온도가 높음(중력에 의한 흐름, 220~240℃)
- 장치의 막힘
- 고화매질의 불규칙 흐름

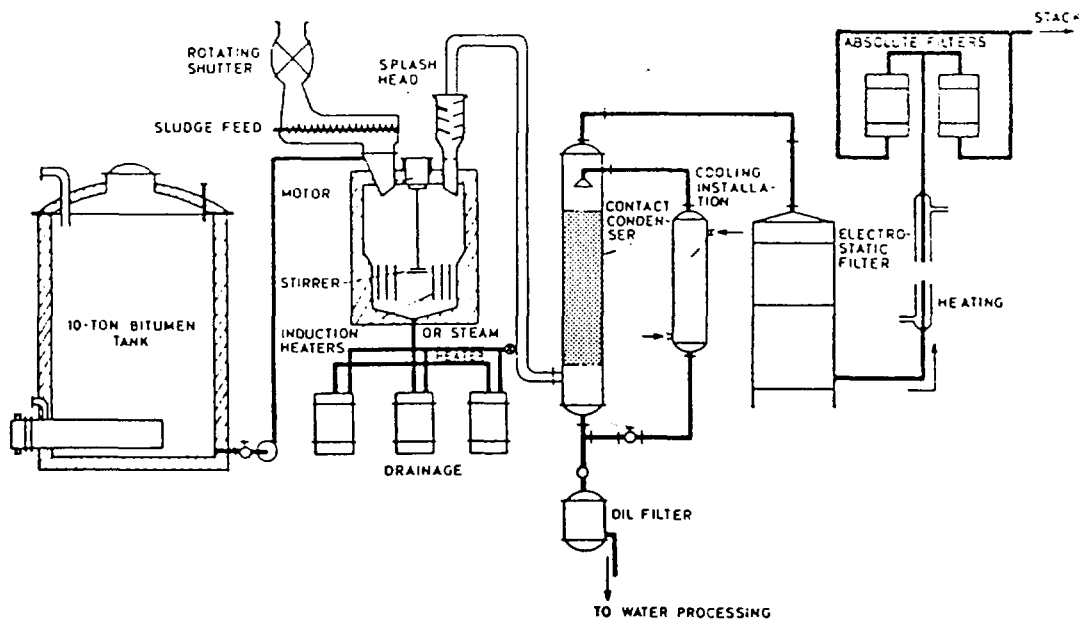


Fig.3. Flow sheet for the bituminization facility at Mol using a Pot form

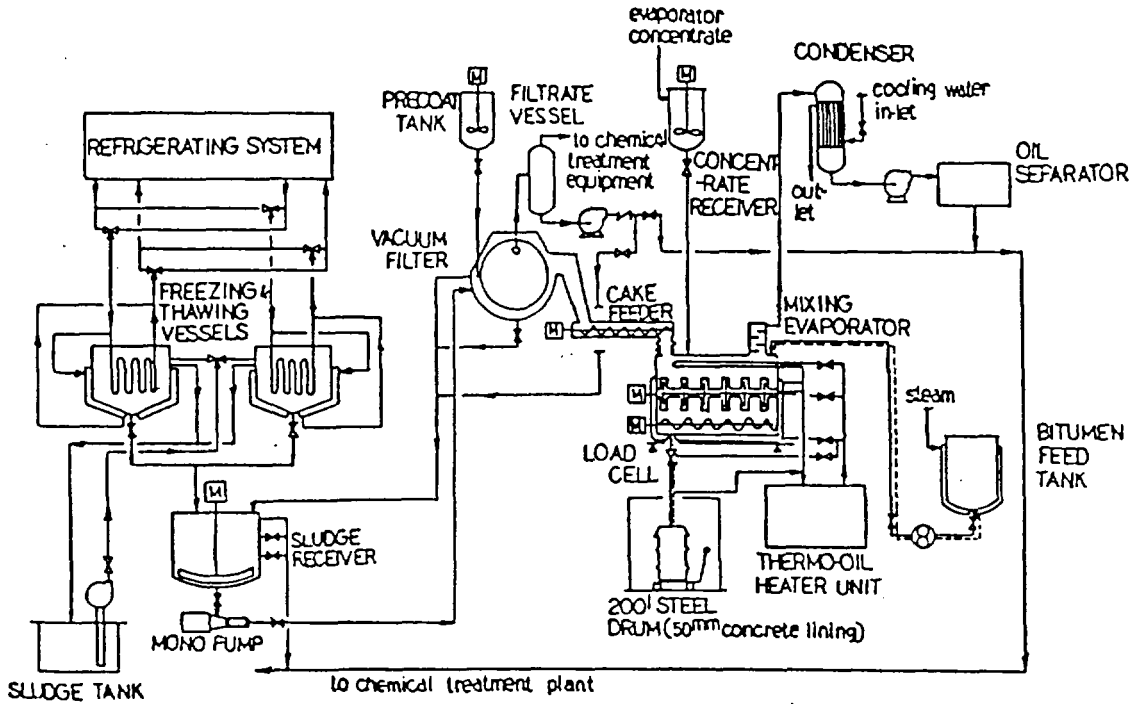


Fig. 4. Flow sheet for the bituminization facility at Oarai using a Drum form

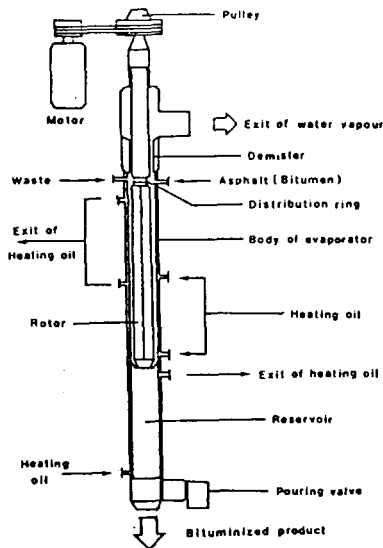


Fig. 5. Simplified diagram of a Thin film evaporator process

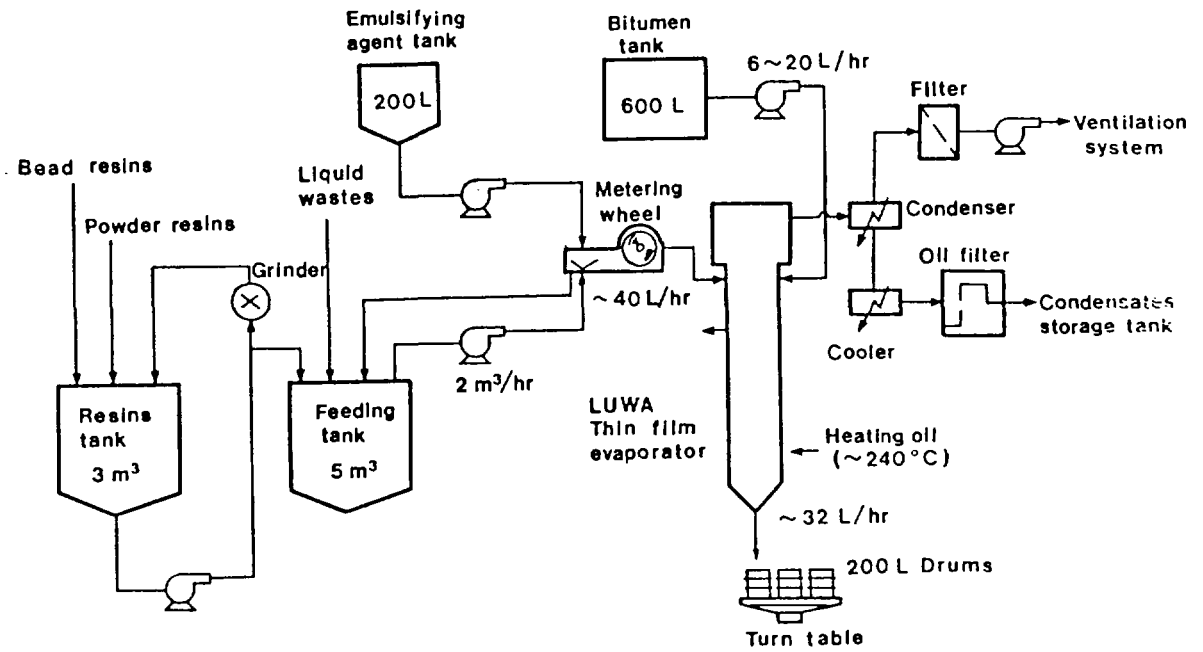


Fig. 6. Flow sheet for the bituminization facility at KAERI using a thin film evaporator form

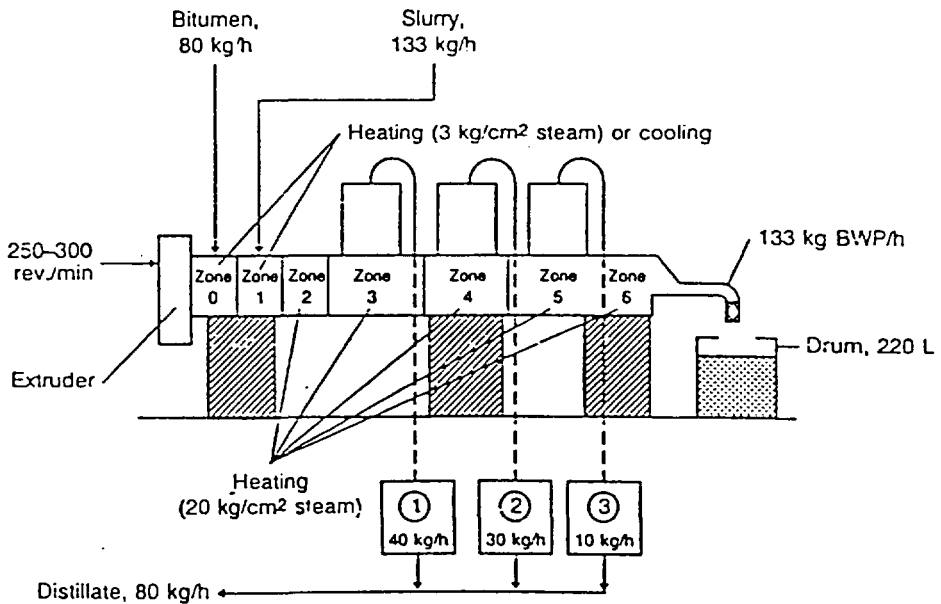


Fig. 7. Simplified diagram of an extruder process

Table 10. Extruder/Evaporator installations for radwaste volume reduction & solidification

Location	Plant type	No. of Extruder /Evaporator trains	Start-up dates	Primary Wastes Processed	Comments
Bellefonte, USA	PWR	1	1987	Concentrates(sulfates and borates) bead resin, powdered resin.	Centrifuged resin feed. Cement system retrofit.
Seabrook, USA	PWR	1	1985	Concentrates, Bead resin.	Centrifuged resin feed. UF system retrofit. System hardware delivered.
Angra 2&3, Brazil	PWR	2	1987	Concentrates, bead resin.	
Marcoule, France	Reprocessing	1	1985	Concentrates(primarily nitrates).	
LeHague, France	Reprocessing	2	1986	Concentrates(primarily nitrates).	
Hope Creek, USA	BWR	2	1987	Concentrates, bead and powdered resin, dry active wastes.	Centrifuged resin feed. System installed. Preoperational testing in progress.
Trillo, Spain	PWR	1	1986	Concentrates (primarily borates), bead resin.	
Fermi 2, USA	BWR	1	1987	Concentrates, bead and powdered resin.	System installed. Centrifuged resin feed. Cement system retrofit. Start-up in progress.
Clinton, USA	BWR	1	1986	Concentrates, bead and powdered resin.	
Palo verd, USA	PWR	1	1987	Boric acid, sodium sulfate bead resin	
North Anna, USA	PWR	1	1990	Boric acid, resin	
Surry, USA		1	1991	Boric acid, resin	

Location	Plant type	No. of Extruder /Evaporator trains	Start-up dates	Primary Wastes Processed	Comments
Palisades, USA	PWR	1	1982	Concentrates (primarily borates) bead resin, powdered resin.	Processing radioactive wastes since 1984, 287 drums of shipped by end of 1986. UF system retrofit.
BM/PNC, Japan	Reprocessing	1	1982	Concentrates, powdered resin, bead resin.	System installed. Start-up in progress.
LaHague France	Reprocessing	1	1983	Concentrates, powdered resin, bead resin.	
Midland, USA	PWR	1	N/A	Concentrates (primarily borates), bead resin.	Operating since 1983.
Laguna Verde, Mexico	BWR	2	1987	Concentrates, powdered resin, bead resin.	System installed. Plant construction suspended.
Lagun & Verde, Mexico	BWR	2	1987	Powder, concentrates (primarily sulfates), bead resins.	System installed.
Winfrith, England	Reprocessing	1	1980	Concentrates (primarily nitrates).	
Iran Project, Iran	PWR	2	N/A	Concentrates, bead resin.	Work suspended.
JGC, Japan	Reprocessing Reseach	1	1981	Concentrates, powdered and bead resins.	
Goesgen, Switzerland	PWR	1	1979	Concentrates (primarily borates), bead resin.	233 drums produced to date On-site storage facility (over 4,100) drums.
Japan organo, Japan	Reprocessing Research	1	1978	Concentrates, bead resin.	

Location	Plant type	No. of Extruder /Evaporator trains	Start-up dates	Primary Wastes Processed	Comments
CRNL, Canada	Research	1	1976	Incinerator ash (both dry and slurry feed), borates, sulfates, decon. Solutions, bead resin, powdered resin.	Pilot plant
Eurochemic, Belgium	Reprocessing	1	1978	Concentrates (primarily nitrates).	11,800 drums produced in 28,000 operating hours. On-site storage for 20,000 drums.
Karlsruhe, W.Germany	Research	1	1973	Concentrates (primarily borates and sulfates), bead resins (both slurry and dry feed), powdered resins, decon. Solutions.	Pilot plant research work completed in 1976. 1,000 operating hours. System in storage at Eurochemic.
Karlsruhe, W.Germany	Reprocessing Research	1	1972	Concentrates (primarily nitrates). Power plant wastes including sulfates, borates, and resins.	1,400 drums produced. Inactive since 1977.
Cadarache, France	Reprocessing Research	1	1970	Concentrates (primarily borates and sulfates), bead resin (both slurry and dry feed), powdered resin, decon. solutions, laundry waste.	Over 7,500 operating hours.
Marcoule, France	Reprocessing Research	2	1965	Concentrates (primarily carbonates and nitrates).	31,500 drums produced up to mid 1982.

2. 고화 비용

아스팔트 고화장치는 시멘트 고화장치보다 다소 복잡하며 결과적으로 장치비, 운영비, 유지비가 시멘트고화보다 높은 편이다. 그러나 고화매질인 아스팔트는 석유산업의 부산물로 얻어지며 우리나라와 같이 정유산업이 발달한 나라에서는 상대적으로 공급량이 많으므로 값이 싸고 구하기도 쉽다. 또한 아스팔트고화는 폐기물의 높은 함유량과 높은 감용율을 가지므로 비용을 절약하는 효과를 갖는다. 즉, 높은 감용율은 시멘트 고화체보다 수송비와 매립지를 구하기 어려운 사회여건하에서 처분비용을 낮출 수 있다. Oyen은 시멘트 고화체의 처분비용과 비교하여 연간 50%이상이 절감된다고 분석하였고,[25] Doyle과 Burns 또한 높은 감용에 따른 효과를 Table 11과 Table 12와 같이 분석하였다[26,27]. Table 13은 박막증발기형 아스팔트 고화장치를 대형 트레일러에 장착한 TVR-III에 의한 처리비용을 시멘트고화와 비교분석한 것이다[23].

결론적으로 아스팔트고화는 폐기물 형태에 따라 비용면에서도 유리한 입장이 될 수 있으며 유해 폐기물처리의 시멘트고화를 대신 할 수 있다.

Table 11. Comparative costs for cementation and bituminization processing of spent resins

Item(s)	Cost (in \$/m ³)	
	Cementation	Bituminization
Solidification	2649	2649
Transportation	1843	971
Burial	2889	1353
Total	7381	4973
(based on data in [Doyle, 1986])		

Table 12. Comparative costs for cementation and bituminization processing of sludge

Item(s)	Cost (in pounds sterling)	
	Cementation	Bituminization
Materials (Cement/bitumen, drums, power, etc.)	23.60	20.60
Non-material costs (wages, overheads, depreciation, maintenance, interest, etc.)	59.00	98.80
Processing cost	82.60	119.40
Transport and disposal	17.10	5.00
Total cost (per 4.55 m ³ sludge)	99.80	124.40
(based on data in [Burns, 1971])		

Table 13. Economic example case

	EXAMPLE CASE 1		EXAMPLE CASE 2	
	1100 MWe BWR 600 MILES FROM BARNWELL		1100 MWe BWR 2500 MILES FROM HANFORD	
	CEMENT	TVR-III	CEMENT	TVR-III
Chemical Na ₂ SO ₄ *	10,000 ft ³ /yr.	10,000 ft ³ /yr.	5,000 ft ³ /yr.	5,000 ft ³ /yr.
Conc. Liquids**	2,000 ft ³ /yr.	2,000 ft ³ /yr.	2,000 ft ³ /yr.	2,000 ft ³ /yr.
Resins/Sludges Dewatered	5,000 ft ³ /yr.	5,000 ft ³ /yr.	2,000 ft ³ /yr.	2,000 ft ³ /yr.
Cost of Service	\$ 55/ft ³	\$ 125/ft ³ (Including Drums)	\$ 55 /ft ³	\$ 125/ft ³ (Including Drums)
Treatment Cost (Incl. Equip. Lease)	\$ 1,188,200/yr. (Including Liners)	\$ 2,125,000/yr.	\$ 848,200/yr. (Including Liners)	\$ 1,125,000/yr.
Container Size	178 ft ³ Liner	55 gal Drum	178 ft ³ Liner	55 gal Drum
Solidified Waste Volume	22,590 ft ³ /yr.	4,460 ft ³ /yr.	11,960 ft ³ /yr.	3,338 ft ³ /yr.
Burial Volume	25,276 ft ³ /yr.	4,598 ft ³ /yr.	13,350 ft ³ /yr.	5,400 ft ³ /yr.
Number of Shipments	142/yr.	44/yr.	75/yr.	52/yr.
Transportation Cost	\$ 915,790/yr.	\$ 142,000/yr.	\$ 675,000/yr.	\$ 300,820/yr.
Burial Cost	\$ 1,137,420/yr.	\$ 206,890/yr.	\$ 467,250/yr.	\$ 189,000/yr.
Total Annual Cost	\$ 3,241,410/yr.	\$ 2,473,890/yr.	\$ 1,990,450/yr.	\$ 1,614,820/yr.
Annual Savings:	\$ 767,500 and 20,673 ft ³ burial volume		\$ 375,630 and 7,950 ft ³ burial volume	

3. 고화체 용기

아스팔트고화체 용기의 설계와 재료는 최종혼합물의 쉽고 안정된 채움, 취급, 수송 및 임시저장에 있어서 매우 중요한 요소이다. 과거에 만들어진 대부분의 안전성 분석은 보수적 가정에 기초했기 때문에 방사성핵종이 고화체에서 환경으로 확산되는데 대한 방벽으로서는 용기를 믿지 못하는 경향이다. 고화체 용기의 설계와 재료는 치수적인 안정성, 용기의 원래 형태 및 매우 긴 시간에 걸쳐 실제 확산방벽으로서 보장할 수 있는 품질이어야 한다. 이러한 진보된 고화체 용기가 기술적 안정성과 경제적 신빙성을 갖는지 아닌지는 담겨진 고화체의 품질과 조성에 크게 의존하며 정책, 기술, 임시 또는 최종저장고로 선택된 장소에 영향을 받는다.

현재 아스팔트고화체에 대해 가장 널리 사용되고 있는 용기는 페인트철로 대기중 부식을 방지하고 총부피가 170~220 l 인 저탄소강 드럼이다. 체코슬로바키아에서 종이 드럼을 사용하였으나 단지 매장장소까지의 이동을 목적으로 사용하였다. Eurochemic에서 특수페인트, 아스팔트, 플라스틱, 실리콘 오일등 보호용 피막재료에 의해 보통의 저탄소강 드럼의 부식 저항력 개선 연구와 부식 저항력이 있는 적절하고 값이 싼 용기재료의 선택을 위한 연구가 실행되어 왔다. 이 결과로 개발된 새로운 철판의 형태는 적어도 50년 동안 아스팔트고화체를 저장할 수 있다. 이 새로운 철판은 "chromized steel" 이라 불리우며 20% Cr을 함유한 철판이 안쪽과 바깥쪽 양면에 70~110 μ 두께로 표면층을 만들어, 전통적 공정에 의해 이 판을 접착시킬 수 있다.

미국에서는 원자력발전소에서 고화된 방사성폐기물 및 탈수된 폐기물은 여러종류의 용기로 포장되어지는데 55 gal(210 l) 드럼에서부터 1.4~9.1m³ 부피를 가진 처분할 수 있는 강철 캐스크 즉, HIC(high integrity container) 등과 처분할 수 있는 콘크리트 캐스크에 드럼 윗부분이 몸체에

붙어 있고 가운데 구멍이 있는 형을 DOT-17E와 DOT-17C라 하며, 드럼
 윗부분 전체를 제거할 수 있는 형을 DOT-17H라고 부른다. 이들 드럼은
 치수, rolling hoop의 수, 뚜껑닫는 방법, 뚜껑의 형태, 무게, 두께가 다르다.
 Fig. 8은 DOT-17C를 나타낸 것이며 Fig. 9는 DOT-17H를, Fig. 10은 고
 강도 용기 HIC를 나타낸 것이다. 10CFR 61 (Code of Federal Regulation)
 에서는 고화체를 받는 용기가

- 저탄소강 용기 : 함유율 0.5 wt% 이하
- 고강도 용기 (HIC) : 함유율 1 wt% 이하

로 규제되어 있다.

미래의 고화체 용기의 설계는 개선된 기계적 안정도, 내외벽사이에 적절
 한 재질로 만든 이중벽 그리고 일정한 시간에 대한 부식저항성, 발화저항
 성, 침출저항성 및 기계저항성을 개선하기 위한 고려가 있어야 한다.

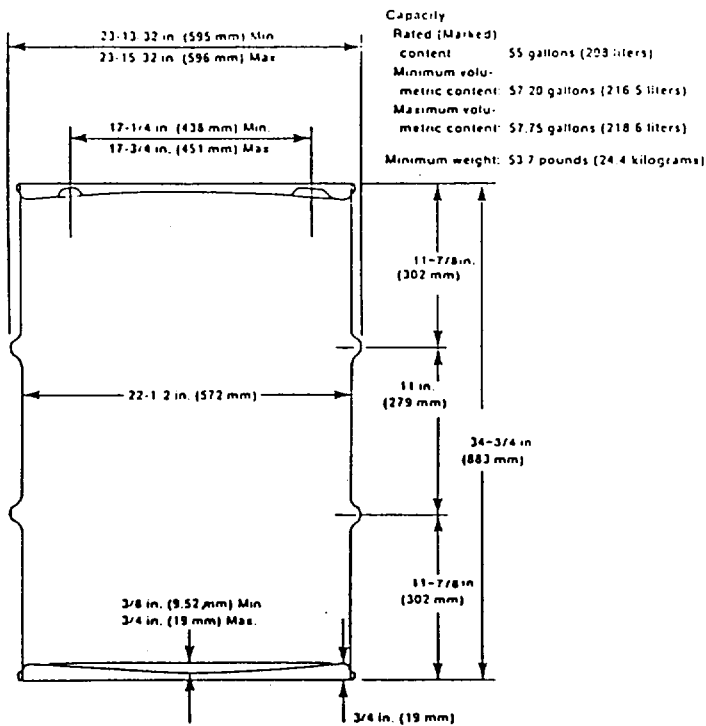


Fig. 8. DOT-17C drum

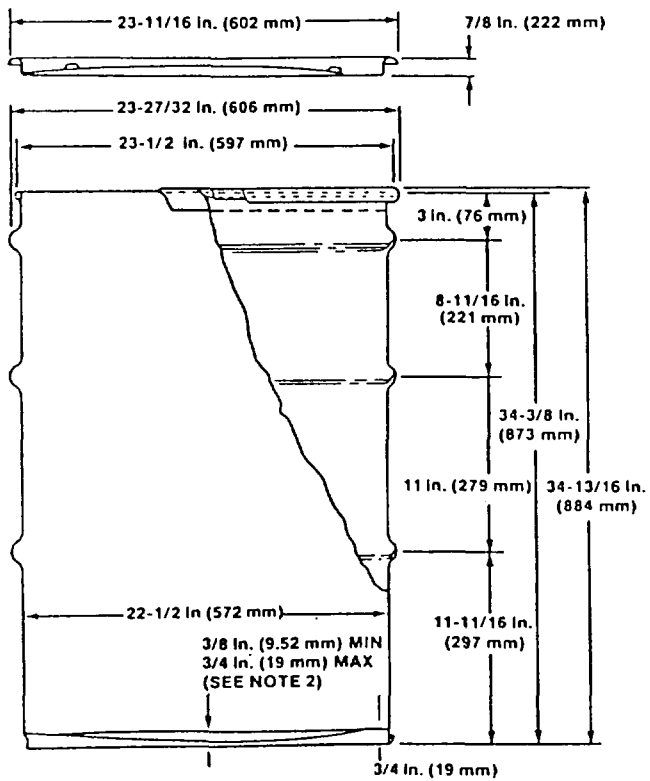


Fig. 9. DOT-17H drum

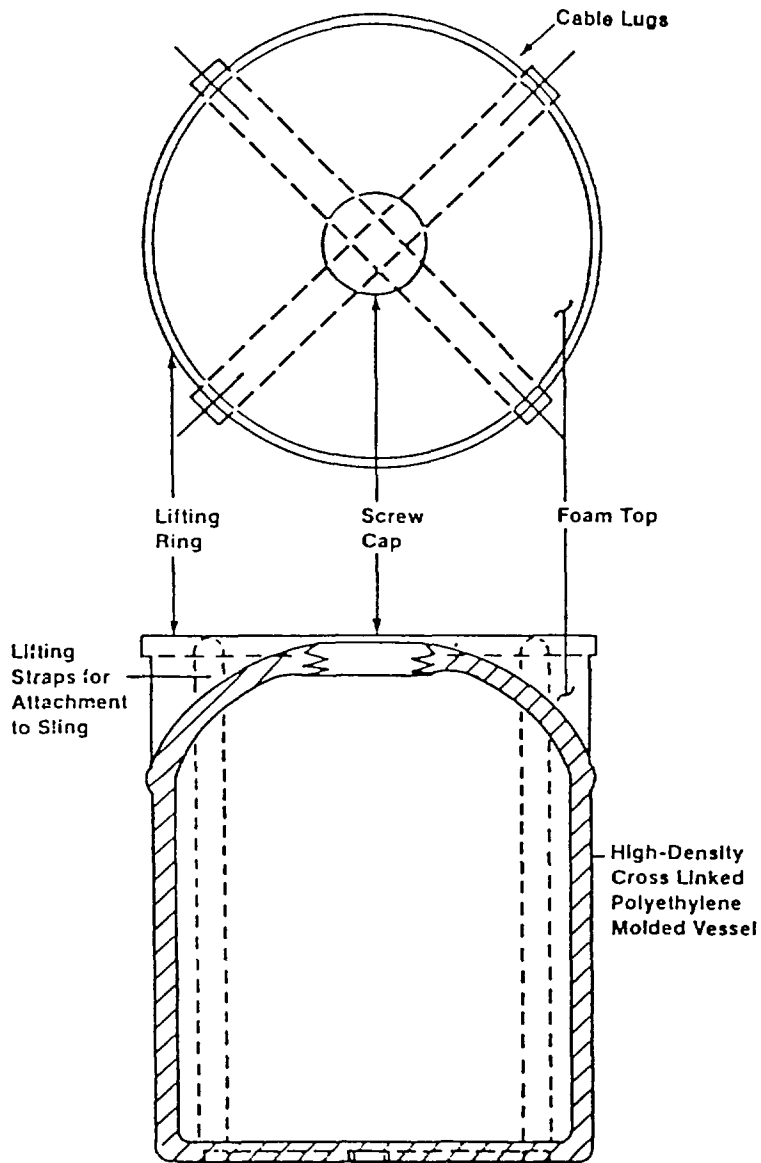


Fig. 10. Representative high integrity container(HIC)

4. 고화체 품질에 영향을 주는 인자

용융된 아스팔트와 혼합된 염 또는 다른 고형분의 양과 성질은 혼합체 성분의 물리 화학적 변화에 영향을 주며 결과적으로 고화체의 품질에 영향을 준다. 어떤 염들은 불균일한 고화체를 만드는데 특히 pot형 고화장치에서 멍치거나 가라앉는 현상이 있다. 이러한 염으로는 NaCl, Ca(NO₃)₂, BaSO₄, NaI 등이 있다. 또 어떤 염들은 아스팔트와 반응하여 아스팔트고화체의 경화의 원인이 되며 때로는 침출율을 증가시키는데 sodium metaborate, calcium methaborate, sodium orthophosphate (NaH₂PO₄, Na₂HPO₄, Na₃PO₄등), MgCl₂, MgSO₄, Alumium sulfate(Al₂(SO₄)₃.18H₂O) 등이 여기에 속한다. 활성이 없어 쉽게 혼합하는 염으로는 Ca₃(PO₄)₂, CaSO₄ calcium carbonate (CaCO₃), sodium carbonate(Na₂CO₃), sodium bicarbonate, sodium sulfate (Na₂SO₄) 등이 있다.

혼합상 이온교환수지의 아스팔트고화때에 음이온교환수지 부분의 열분해는 100℃ 이상의 온도에서 일어나며 분해 가스의 주성분은 trimethylamine 으로 이것의 발화온도는 약 180℃ 이다. 아민의 발생을 줄이기 위해서 음이온교환수지의 아스팔트고화는 가능한한 낮은 온도에서 이루어져야 한다. 압출기형 증발기를 사용한다면 폐기물의 출구온도를 폐기물 유입구 온도보다 오히려 감소시켜야 한다. 즉, 160℃에서 120℃로 감소시킨다.

아스팔트고화체의 안전과 관련된 특성을 만족시키기 위해서는 아스팔트와 혼합하기 위한 적절한 폐액, 농축폐액, 슬러리등을 만들어 아래의 전처리와 조건을 고려하여야 한다[28].

- 액상이 산성이라면 아스팔트고화처리 이전에 중화하거나 알칼리성 (pH 7~10)으로 만들어야 한다.
- 알칼리화에 의한 침전으로는 대부분의 핵분열생성물, Sr-90, Cs-137 및 기타 반감기가 긴 핵종들을 불용성으로 하기에 불충분하므로 침

전, 흡착등을 사용한 불용화 방법을 적용하여야 한다.

- Sr은 barium sulfate(BaSO_4) 또는 calcium carbonate(CaCO_3) 로 공침
- Cs은 nikel ferrocyanide로 공침
- Ru은 Cu, Fe(II) hydroxide의 혼합물로 pH 8에서 침전
- 물에 용해되어 음이온을 형성하고 물 두분자 이상과 결합할 수 있는 염은 물과 접촉했을때 고화체의 팽윤위험과 침출율을 감소시키기 위해 불용성 화합물 또는 덜 용해되는 화합물로 전환 시켜야 한다.

아래의 방법들은 고화체품질에 영향을 줄 수 있는 인자에 대한 조치들이다.

- 유화제의 첨가(4~6%)는 발화온도를 더욱 낮게 하지만 뜨거운 혼합물의 점도를 낮게 함으로써 쉽게 혼합할 수 있고 균일한 고화체를 얻는데 도움이 된다[29].
- 150℃ 이상의 높은 온도에서 젖은 이온교환수지의 혼합은 과도한 거품을 일으키고 다공성이 매우 높은 고화체가 만들어질 수 있다.
- 폐기물의 성분을 아스팔트와 135℃ 이상의 높은 온도에서 오랜시간 반응시키면 폐기물 성분의 침출율을 더욱 낮게 할 수 있다.
- 아스팔트 고화장치의 정상적 체류시간하에서 혼합가열 온도를 190~200℃로 하면 1 wt% 이하의 함수율을 갖는 고화체를 만드는데 도움이 된다.
- 이온교환수지와 염의 농도가 높은 증발농축폐액의 혼합처리는 이온교환수지의 핵중 고정역할을 감소시키므로 높은 침출률을 야기시킬 수 있다.
- 불활성물질과 핵중의 고정화 전처리를 한 폐기물은 이온교환수지와

혼합처리 하는데 영향을 주지 않는다.

- 이온교환수지(<50wt%), 염, 무기물등의 혼합처리는 아스팔트 고화체의 형태 안정성을 높여준다.
- Fe 3가의 무수염 1% 이상과 NaNO_3 또는 NaNO_2 의 동시 존재는 아스팔트의 열 안정도를 낮춘다[30].
- 다량의 습기를 빨아드리는 물질(hygroscopic substances: Na_2CO_3 , Na_2SO_4 , Na_3PO_4 등)과 50 wt% 이상의 이온교환수지의 혼합 처리는 물과 접촉했을 때 고화체의 심각한 팽윤을 야기시킬 수 있다.
- 220°C 이상의 온도에서 15 wt% (150g/l) 이상의 NaNO_3 와 아스팔트의 혼합은 산화에 의해 강하게 경화되므로 혼합물의 흐름을 어렵게 한다.
- 강알칼리성(pH>13) NaNO_3 용액의 아스팔트고화는 발화온도가 낮고 침출율이 높은 단단한 고화체를 만든다.

실제 고화체에서 느린 냉각속도는 고형분의 침전을 일으키고 이로 인해 불균열한 고화체를 야기시키는 원인이 될 수 있다. Fig. 11은 아스팔트 55 wt%/ NaNO_3 45wt%인 아스팔트고화체의 냉각속도를 나타낸 것이다. 드럼에 채워진 뜨거운 혼합물이 실온까지 냉각되는 평균 냉각속도는 약 2°C/hr이며, 이런 냉각속도에서 아스팔트 함유량이 50~55 wt%인 고화체는 균일성을 가진다는 것을 Eurochemic에서 실험으로 입증했다.

침전속도는 주로 입자의 크기, 모양, 밀도 및 아스팔트의 점도(온도)에 영향을 받으므로 어떤 형태의 공정에서도 발생할 수 있다. 입상형 이온교환수지의 심각한 침전현상을 실험적으로 측정하기 위하여 드럼내에 관을 세워 놓고, 정상적으로 아스팔트고화처리를 한 다음 고화체 드럼을 냉각하여 실험관을 꺼내어 방사능을 측정한 결과 바닥부분의 방사능이 윗부분의 거의 2배로 나타났다.

필란드에서 실행된 연구에서 같은 조건하에서 분말수지의 침전은 입상수지의 침전에 비해 무시할 정도이다. Table 14는 분말수지와 입상수지를 Bit-45 (직류아스팔트)로 고화한 고화체(아스팔트:수지 무게비= 1:1)의 침전 자료이며, Fig. 12는 고화체에서 수지의 분포도를 나타낸 것이다[31].

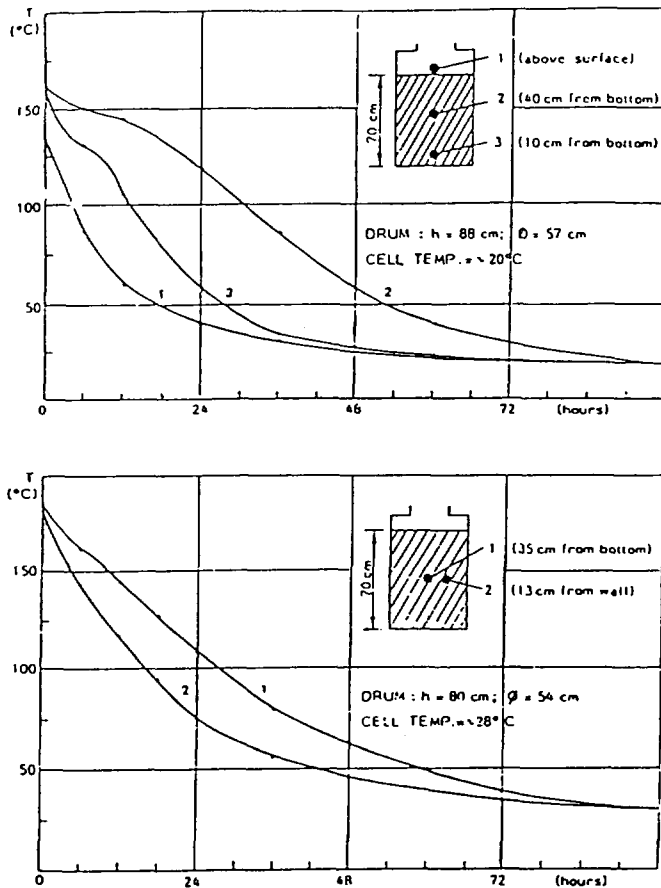


Fig. 11. Cooling curves of bitumen-waste product(55wt% bitumen/45wt% NaNO_3)

Table 14. The relative activity distribution when the activity at the bottom was chosen as 100%

Sample	Co-58 (%)	Mn-54 (%)	Zn-65 (%)	Co-60 (%)
Granular :				
- Surface GS	45	51	52	55
- Center GC	55	62	62	66
- Bottom GB	100	100	100	100
Powder :				
- Surface PS	95	96	96	95
- Center PC	97	97	98	97
- Bottom PB	100	100	100	100

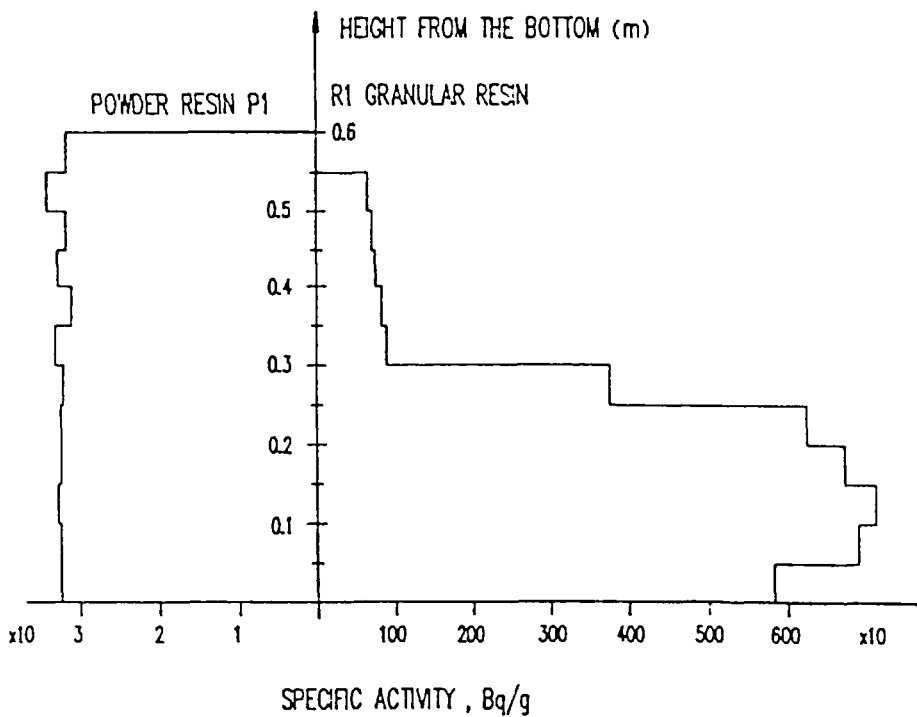


Fig. 12 - The distribution of the activity along two vertical samples from both a drum of bituminized powder and granular resin

5. 고화시 위험인자

뜨거운 아스팔트와 폐기물 고형분의 혼합은 발화와 폭발의 두가지 주요 인자를 고려해야 한다. 아스팔트의 가연성은 방사성폐기물의 고화매질로서 중요한 결점이 되고 있다. 어떤 형태의 폐기물은 아스팔트고화시 발화의 위험성을 내포할 뿐만아니라 폭발과 같은 반응이 일어날 수도 있으므로 아스팔트고화 공정의 안전성에 주의가 요망된다.

재처리공정과 핵연료주기의 폐기물 농축액은 화재와 폭발위험물 취급의 측면에서 위험물로 분류된다. 특히 NO_3 를 포함하는 폐액과 열역학적으로 불안정하거나 휘발성이 강한 유기화합물이 주목의 대상이다. 핵연료 재처리공정에서 발생하는 중준위 액체폐기물의 주요성분은 NaNO_3 이며, 이것은 열, 가스, 및 압력의 존재하에서 아스팔트를 산화시킬 수 있다. 이와 같은 반응은 아스팔트고화장치에 손상을 입히기 때문에 열역학적조건과 반응염의 농도는 아스팔트고화 공정의 안전운전에 있어서 가장 중요한 것이다. 따라서 아스팔트 고화공정의 운전조건은 폭발적 성질의 발열반응이 불가능하도록 전처리 하여야 하며 휘발성 유지물질이 타기 쉽거나 폭발하기 쉬운 형태로 누적되지 않도록 하는 방법을 선택하여야 한다.

아스팔트 그 자체는 가연성물질로 분류되지 않으며, 아스팔트의 발화점은 $200\sim 320^\circ\text{C}$ 범위이다. 따라서 운전단계에서 화재위험은 근본적으로 스파크(spark) 등의 발화원인과 부분적인 과열에 의한 것이다.

가. 연구와 결과

아스팔트에 다른 염과 함께 sodium nitrate(NaNO_3)와 sodium nitrite(NaNO_2)등이 혼합되므로써 일어날 수 있는 위험성에 대한 연구가 매우 많이 실행되었다. 연구 대상의 모든 염에서 심각한 발열반응을 나타내는 온도는 $390\sim 430^\circ\text{C}$ 사이이며, 이 온도는 NaNO_3 와 NaNO_2 가 녹기 시

작하는 용융온도를 넘는 온도 범위로서 NaNO_3 와 NaNO_2 가 심각한 발열 반응을 야기시킴을 밝혀냈다[8,32].

Mexphalt R 85/40과 다양한 성질의 염, 즉 NaNO_3 와 NaNO_2 같은 용해 성염과 불용성염을 사용하여 안전한 혼합조건을 확립하기 위한 실험이 실행되었다.

산화 아스팔트인 Mexphalt R 85/40의 원소분석결과는 다음과 같다.

C : 84.0 %, H : 11.0 %, S : 2.7 %, O : 2.3 %

Mexphalt R 85/40 13.13%와 NaNO_3 86.87%의 두성분으로된 혼합물은 아스팔트의 완전한 연소를 위해 필요한 이론적 산소량을 함유한다. 이 혼합물은 NaNO_3 의 용해온도인 315°C 까지는 현저한 발열반응은 없고, 400°C 이상이 폭발온도임을 보여주었다. 산소가 충분하지 못한 다른 혼합물이 오히려 13%/87% 혼합물 보다 더 위험한 결과를 보였는데 Mexphalt R 85/40과 NaNO_3 41.94%, NaNO_2 16.47%, 불용성 고형물 28.46%를 혼합한 혼합물은 250°C 에서 발열반응을 나타내고 약 350°C 에서 폭발성반응을 나타내었다. 아스팔트/염 혼합물(40~50% 산화아스팔트/ NaNO_3 + NaNO_2 + 물 + 불용성염)에 대한 열차분석(DTA, Differential thermal analysis)으로 295°C 이하에서 발열반응이 일어나지 않음을 알 수 있었다. 행하여진 실험 으로부터 아래의 주요한 결론을 얻었다[8].

- 아스팔트/염의 혼합물에서 첫째 아스팔트함유량이 적어도 40 wt%이고, 둘째 다른염 성분이 고화체에 균일하게 분산되어 있으며, 셋째 혼합물의 온도가 280°C 이하로 유지되는 조건하에서는 산화아스팔트 (Mexphalt R 90/40 또는 R 85/40)와 폐슬러지에 함유된 NO_3 와 NO_2 의 혼합은 자발적인 발열반응을 일으키지 않는다.
- 염의 균일한 분산이 보장될 수 없다면 고화체의 아스팔트 함유량이 최소 50 wt%가 요구되고 혼합물의 온도는 위험한 발열반응을 피하

기 위하여 230℃를 초과 하여서는 안된다.

소련에서 행해진 연구[33]는 어떤 온도에 도달하면 NaNO_3 /아스팔트의 모든 혼합비율에서 서로 반응을 한다고 보고하였다. 혼합물에서 NaNO_3 가 70 wt%일때 가장 낮은 상호반응 온도를 보였는데 그 때의 온도가 350℃였다. 다른 성분이 존재하는 경우 즉, 붕소화합물, 철, $\text{Mn}(\text{OH})_2$, 알카라물질 등이 존재할 때 NO_3 -아스팔트의 상호반응온도는 알카리 물질이 존재할 때만 약 240℃로 떨어진다. 이것은 NO_3 와 알카리 혼합물의 용융점이 감소하기 때문이다.

아스팔트에 NO_3 의 중금속화합물과 알카리물질의 다양한 혼합물(염:아스팔트 무게비= 2:1)을 사용하여 입증된 사실은 180℃~250℃ 사이의 온도에서 아스팔트와 혼합시 NO_3 존재에 대한 안전성문제는 공기속에서나 물이 포화된 대기에서도 폭발과 같은 반응은 결코 일어나지 않으며, NO_3 의 염을 함유한 슬러리가 아스팔트고화 되기전에 pH 9~10으로 조절하면 180℃~250℃의 온도범위에서 생성된 고화체의 무게 손실은 작다[34].

다양한 연구에서 도출된 중요한 연구결과를 요약하면 다음과 같다[35].

- 대부분의 아스팔트는 400℃ 이하의 온도에서는 자발적으로 발화하지 않는다.
- 발화가 일어나면 아스팔트/ NO_3 염 혼합물이 순수아스팔트 보다 더 빨리 탄다. 즉, NO_3 는 연소를 가속화 시킨다.
- 고형분 60 wt% 이하를 함유한 아스팔트/ NO_3 염의 고화체는 어떠한 폭발적 잠재력이 없다.
- 세정폐액에 존재하는 어떤물질은 아스팔트고화체의 연소온도를 낮게 한다. 즉, NO_3 와 sodium citrate($\text{Na}_3\text{C}_6\text{H}_5\text{O}_7$) 20 wt%를 함유하는 혼합물은 매우 낮은 연소온도(230~260℃)를 갖는다.

- 아스팔트(B15)/40~60 wt%염의 혼합물(재처리공정과 연구기관에서 나온 모의 혼합폐기물)의 연소점은 300℃ 이상이다.
- 원자로 폐기물(H_3BO_4 , 세제, Na_2SO_4)에 대한 아스팔트 50 wt%/염 50 wt% 혼합물의 연소점은 400℃ 이상이다.
- 아스팔트 (B15) 50 wt%/Li과 B가 이온교환된 입자형 이온교환수지 40 wt% , 물 10 wt% 인 혼합물의 연소점은 약 400℃이다. (음이온 교환수지는 약 120℃ 에서 열적으로 분해됨이 관찰되었다.)
- 재처리공정 폐기물에서 40 wt% 아스팔트/염 60 wt%인 고화체의 자발화점 (self-ignition point)은 360℃ 이상이다.

결론적으로 원자력발전소 폐기물과 다음과 같이 준비된 재처리시설에서 발생하는 방사성 폐기물의 아스팔트고화처리는 화재, 폭발 또는 위험한 발열반응의 위험은 존재하지 않는다[36].

- 아스팔트/폐기물의 혼합물에서 아스팔트 함유량을 50wt% 이상으로 한다.
- 아스팔트/폐기물의 고화온도를 230℃ 이하로 한다.
- 폭발성 가스의 축적을 막기위하여 강력한 환풍기를 설치한다.
- 연소점이 매우 낮거나 쉽게 휘발하는 물질은 파괴하거나 변환시키기 위해 전처리공정에서 제거한다.

제 3 절 아스팔트고화체의 성질

1. 고화체의 특성

가. 고화체의 특성 비교

고화체라는 말은 고체 또는 고체와 유사한 성질을 갖도록 만든 물체를 의미하는데 고체가 기체, 액체와 크게 구분되는 성질은 일정한 형태를 유지하는 구조를 갖는다는 사실이다. 고화체와 고화매질에 대한 특성을 비교 요약 하면 Table 15와 같다[37].

2. 고화체의 안정성에 관련된 성질

방사성폐기물 고화체의 저장은 고화체로부터 환경으로 방사성핵종의 방출이 인간에게 위험한 방사성피폭을 초래하지 않을 때 안전하다고 할 수 있다. 고화체 그 자체의 품질은 1차적으로 인간의 생활공간으로 폐기물 성분의 확산을 막거나 지체시키는데 중요한 역할을 한다.

고화체의 안전한 저장의 관점에서 고화체의 품질은 여러가지 물리적, 화학적 영향에 대한 안전성을 결정하는 요소가 된다.

아스팔트 고화체의 특성은 세계 여러 연구기관에서 조사되어 왔고 아스팔트 고화체의 안전한 저장을 위해 중요하다고 판단되어지는 성질과 인자는 다음과 같다.

- 침출매체에 대한 저항성
- 방사선에 대한 안정성과 영향
- 열에 대한 안정성과 영향
- 혼합된 고형물의 침전성
- 연소성과 폭발성

- 기계적 안정성
- 방사분해가스와 물 흡수력에 의한 팽윤

Table 15. Summary of solidification media characteristics and attributes

	Cementation Processes	Thermoplastic Polymers	Thermosetting Polymers	Gypsum
Data available: Short-term long-term	Much Some	Much Little	Adequate Some	Adequate Little
Waste stream limitations	Ion exchange resins; oils; organics; borates and boric acid.	Oxidizing agents (e.g. nitrates); organic liquids.	Boric acid; Borates; Wastes must be dewatered.	Few
Sensitivity to changes in waste chemistry	Very sensitive	Relatively insensitive	Relatively insensitive	Very insensitive
Radionuclied retention ability	Cs hard to retain; Co, Sr much more tightly bound.	Retention ability much better than cement.	Retention ability much better than cement.	Cs and Co very hard to retain.
Modeling development	Some	Little	Some	Little
Ease and safety of use	Materials safe to handle; process simple but detailed characterizing of wastes needed.	Process simple but potential fire hazard due to high temperatures.	Processes more complex; material may be flammable.	Similar to cementation; process may be simple; detailed characterizing of wastes not needed.
Relative costs; materials processing transport disposal	Low Low High High	High High High Low	Very high High Moderate Moderate	Low Low Moderate Moderate

가. 침출 저항성

최종저장소(처분장)의 안전성 보장은 최종적으로 방사성폐기물 고화체에 함유된 방사성 핵종이 주위환경으로 얼마만한 시간에 얼마만큼 누출되느냐에 달려 있다고 해도 과언이 아닐 것이다. 이때 핵종을 이동시키는 가장 강력한 매개체는 사고시 처분장에 스며드는 지하수, 바닷물, 빗물 등의 물이다. 따라서 방사성폐기물 고화체의 침출저항성은 고화체의 여러 가지 성질중에서도 특히 중요한 것으로 인식되고 있다.

방사성폐기물 고화체의 침출시험의 목적은 다음 세가지로 요약할 수 있다[38,39]. 첫 번째는 여러 가지 고화체의 개발과정에 있어 서로의 우열을 비교하여 보다 우수한 고화체 개발을 위한 기초자료를 얻는 것이다. 두 번째는 고화장치를 운전하여 고화체를 제조할 때 품질관리에 이용하는 것이다. 세 번째는 지층처분시에 있어 다른 포장관련인자나 지층중의 암반 등 자연증벽을 포함한 복합적 침출계에 대하여 방벽의 성능평가와 핵종이동의 장기예측을 하기 위하여 종합적인 침출거동에 관한 지식을 얻는데 있다. 각국에서 하고 있는 침출시험은 대부분이 첫 번째와 두 번째 목적에 해당한다고 말할 수 있으며 처분시의 인수기준도 여기에 준하여 설정된 것이다.

침출시험법은 시험조건에 따라 몇가지로 분류할 수 있으며 침출액의 교환 또는 교반의 유무 및 교환방법에 따라 나누어 보면 다음과 같다[39]. 우선 시험기간중 침출액의 교환이나 교반을 주기적 또는 연속적으로 하여 주는 동적 침출법과 교환이나 교반을 전혀 하지 않는 정적시험법으로 대별할 수 있다.

동적시험법은 정해진 횟수로 침출액을 교환하는 것과 물이 연속적으로 흐르는 기능을 가진 장치에 의하여 액교환을 하는 방법으로 다시 나누어진다. 정해진 횟수에 따라 침출액을 교환하는 방법으로는 잘 알려진 IAEA

시험법과 이를 개량한 ISO 표준시험법, ANS 표준시험법등이 있다. 유수형 장치를 사용하는 방법으로 처분장 지하수에 해당하는 작은 유속으로 시험하는 일본의 MCC-4 시험법이 있고 또 큰 유속조건에서 시험하는 방법으로는 널리 알려진 Soxhlet법이 있다. 이상의 동적시험법은 침출액의 교환 횟수나 유속의 증가에 따라 고화체의 침출효과가 커진다고 알려져 있다. 기타로 침출액을 교환하지는 않지만 침출액의 평형조건을 얻기 위하여 교환을 해주는 방법도 있다.

한편 정적시험법은 고화체를 침출액에 담그고 어떤 시기에 시료를 채취하여 침출된 양을 측정하는 방법으로 고화체에서 한번 용출한 성분이나 침출에 의하여 생성된 반응물이 침출반응의 진행에 영향을 미치는 것을 고려하기 위한 실험방법이다. 일반적으로 용출된 성분이나 생성물의 침출을 억제하는 방향으로 작용한다. 일반적으로 용출된 성분이나 생성물은 침출을 억제하는 방향으로 작용한다. 고준위 폐기물이 유리고화체의 지층처분 환경에서 일어나는 침출반응은 정적침출에 가까운 것으로 평가되고 있다. 정적침출법으로는 국제적으로 표준화된 것은 없으나 널리 알려져 있는 것으로는 일본의 MCC-2가 있다.

ANS 표준시험법은 IAEA 시험법을 실질적으로 개선한 방법으로 저준위 폐기물 고화체의 방사성핵종에 대한 보유능력을 평가할 수 있다. 이 방법은 고정된 침출조건하(단일 침출액, 단일 온도조건, 규정된 침출액의 교환 횟수)에서 시험을 하며 결과는 침출지수로 나타낸다. ANS 시험법은 다른 시험법에 비하여 실질적이고 시편의 제조가 간편하며 침출조건을 완전히 고정화하도록 되어 있으며 결과를 간단한 값을 가지는 침출지수로 표시함으로써 활용면에서 큰 장점을 갖고 있다.

물질의 침출성은 침출률 $L(g/cm^2 \cdot day)$ 로 표현되는데 다음식에 따라서 결정된다.

$$L = \frac{a_n}{A_o} \cdot \frac{m}{S \cdot t}$$

여기서 a_n = 시간 t 에서 침출된 물체 A 의 방사능 또는 농도

A_o = 물체 A 의 초기 총 방사능 또는 농도

m = 시료의 무게(g)

S = 침출제(leachant)에 노출된 시료의 표면적 (cm^2)

t = 침출시간(day)

물질 A 는 특별한 원소, 방사성동위원소, 화합물이 될 수 있다. 따라서 침출율을 결정짓는 물질에 대해 명확히 지적되어야만 한다. 침출률에 대한 정확한 SI 단위는 $\text{kg}/\text{m}^2 \cdot \text{s}$ 인데, 잘 사용되고 있지 않다.

침출실험의 결과는 또한 누적침출률로 표현될 수 있는데, $R_n(\text{m/s})$ 은 침출시간 $t(\text{sec})$ 의 함수로서 다음식으로 표현된다.

$$R_n = \frac{a_n}{A_o \cdot S \cdot \rho \cdot t_n}$$

여기서 a_n = 각 침출시간 t_n 동안 침출된 방사능 [s^{-1}]

A_o = sample의 초기 비방사능 [$\text{s}^{-1}, \text{kg}^{-1}$]

S = 침출제에 노출된 sample의 면적 [m^2]

ρ = sample의 밀도 [kg/m^3]

t_n = 각 구간의 침출 지속시간 [s]

t = 누적 침출시간 [s]

A_o 와 a_n 은 자연감쇄기간을 보정해야 한다.

침출율 R_n 은 R_n 대 t 의 그래프에서도 알 수 있듯이 침출제의 교환후 일정 시간 이후에도 일정한 값을 갖는다. 따라서 실질적으로 일정한 계수범위에 들어오는 R_n 의 평균값을 권장한다.

침출시험의 결과를 비교할 때 고려해야 하는 사항은 다음과 같다.

- 측정에 있어서 error의 가능 요소는 없는가
- 실험조건들이 주의 깊게 조절되었는가
- 방법, 조건, 사용된 고화체의 형태가 실질적으로 비교될 수 있는가
- 시료가 아스팔트 고화처리 공정에서 발생된 고화체에 대해 대표성을 갖는가.

아스팔트 고화체에서 폐기물성분의 침출율은 다음 인자에 의해 주로 영향을 받는다.

- 아스팔트 고화체의 조성(폐기물/아스팔트 비율, 용해성과 비용해성에 염의 함량등)
- 혼합된 폐기물 고형분의 입자크기
- 아스팔트 고화체의 잔류 함수율
- 아스팔트 형태
- 아스팔트 고화상태
- 방사선 피폭선량
- 침출용액의 조성(염의 농도, pH)
- 온도

방사성 핵종의 침출률을 결정하는 인자는 혼합되어 있는 고형분의 핵종 또는 부분을 이루고 있는 화학적 화합물의 용해도이다. 아스팔트 고화체 침출률에 영향을 주는 여러 가지 용인에 대한 실험적 연구의 가장 중요한 결과를 아래에 요약한다.

(1) 혼합된 폐기물의 조성과 양에 의한 영향

- 침출율은 실험의 조건(상태)보다 고화체에서 폐기물 고형분의 비율과 핵종 (Cs, Na > Sr)에 더 영향을 받는다[40].

- 침출률은 고화체에서 염의 함량이 증가함에 따라 증가한다.
- 고화체에서 알카리량이 5 wt%를 초과하면 침출저항을 감소시킨다 [41].
- 농축폐액의 아스팔트 고화체에서 고형분의 20~60 wt% 일 때 약 6개월간의 침출률은 일정한 값을 가진다[42].
- 농축폐액의 아스팔트 고화체에서 고형분이 60 wt% 일때 침출률은
 정지상태에서 : $3 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$
 흐름상태에서 : $5 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$
- 고형분이 20wt% 일 때 침출률 : $1.5 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$ [42]
 Ru-106의 침출률 : $7 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$ [43]
- BN-III인 아스팔트로 고화한 고화체의 1년후 Cs-137의 침출률은
 - NaNO_3 40 wt% 일때 : 약 $10^{-4} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$
 - $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ 40 wt% 일때 : 약 $10^{-5} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$
 - CaC_2 40 wt% 일때 : 약 $10^{-6} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$ 이하 [14]
- 아스팔트 45 wt%인 아스팔트 고화체가 아스팔트 40, 50, 60 wt% 고화체와 비교하여 최적의 침출저항을 보였다[44].
- B-15인 아스팔트와 다양한 NaNO_3 ($\sim 500 \mu$ 입자크기) 함량을 갖는 고화체를 침출용액으로 증류수를 사용하면 1년 동안 Na 침출률을 구하면

NaNO_3 content (wt%)	1	5	10	20	38
mean leach rate ($\text{g/cm}^2 \cdot \text{day}$)	Not detectable	4×10^{-6}	7×10^{-6}	2×10^{-5}	9×10^{-5}

- 아스팔트/ NaSO₄ 고화체(아스팔트 50% / NaSO₄ 50%)의 침출물은 포화 NaCl 용액에서 : 1.7×10^{-6} g/cm².day
 혼합용액(MgCl₂ 31.2%, MgSO₄ 1.85%, KCl 0.56%, NaCl 0.18%, H₂O 66.12%)에서 : 1×10^{-6} g/cm².day [35]
- 아스팔트 고화체에서 유화제 6 wt% 까지는 침출물에 영향을 미치지 못 한다.
- 결정수 또는 수화물로서 많은 물분자와 결합할 수 있는 화합물을 함유하는 고화체는 $10^{-3} \sim 10^{-1}$ g/cm².day 정도로 낮은 침출저항성을 나타낸다.
 - sodium carbonate \longrightarrow Na₂CO₃ . 10H₂O
 - sodium sulfate \longrightarrow Na₂SO₄ . 10H₂O
 - disodium hydrogenphosphate \longrightarrow Na₂HP₄ . 12H₂O
 - sodium tetraborate \longrightarrow Na₂B₄O₇ . 10H₂O
 - sodium chromate \longrightarrow Na₂CrO₄ . 10H₂O

이들 화합물의 흡수력은 고화체의 팽윤을 초래하고 고화체에 금이 가면 침출수에 노출되는 면적이 더욱 넓어져 침출율을 증가시킬 수 있다.

- 방사성폐기물의 아스팔트 고화체에 대한 침출 model들을 요약하면 다음과 같으며 주된 전달기구는 Fick의 제 2법칙인 확산에 근거하고 있다.

Medium	Transport mechanism
<u>semi-infinite</u> , homogeneous, chemically inert	<u>diffusion</u>
$\frac{\sum a_n}{A_o} \times \frac{V}{S} = 2\left(\frac{Dt}{\pi}\right)^{\frac{1}{2}}$	
<u>finite cylinder</u> , homogeneous, chemically inert	<u>diffusion</u>
$\frac{\sum a_n}{A_o} = 1 - \frac{32}{\pi^2} \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\exp\left[-\left(\frac{J_{om}}{r}\right)^2 Dt\right]}{J_{om}^2} \cdot \frac{\exp\left\{-\left[\frac{(2n-1)\pi}{h}\right]^2 Dt\right\}}{(2n-1)^2}$	
<u>Semi-infinite</u> , uniform initial concentration	<u>diffusion + concentration</u> <u>-dependent dissolution</u>
$\frac{\sum a_n}{A_o} \times \frac{V}{S} = (kD)^{\frac{1}{2}} \left[\left(t + \frac{1}{2k}\right) \operatorname{erf}(kt)^{\frac{1}{2}} + \left(\frac{t}{\pi k}\right)^{\frac{1}{2}} e^{-kt} \right]$	
<u>semi-infinite</u> , uniform <u>initial concentration</u>	<u>diffusion + surface dissolution</u> (moving boundary)
$\frac{\sum a_n}{A_o} \times \frac{V}{S} = (RD)^{\frac{1}{2}} \left[\left(t + \frac{1}{2R}\right) \operatorname{erf}(Rt)^{\frac{1}{2}} + \left(\frac{t}{\pi R}\right)^{\frac{1}{2}} e^{-Rt} + t \right]$	

* a_n = Amount of substance of interest leached in interval n;

A_o = total amount of substance of interest originally present;

(V/S) = volume to surface ratio; t = time;

D = diffusion constant;

k = dissolution rate constant; erf = error function;

$R = U^2/4D$ where U = velocity on the moving boundary.

$J_{om} = m^{\text{th}}$ positive zero of the zeroth order bessel function;

r = radius of cylinder; h = height of cylinder.

(2) 입자크기와 균일성에 의한 영향

NaNO₃ 염의 함량이 높은 중준위 농축폐액은 압출기형 증발기로 균일성이 뛰어난 고화체를 만들 수 있는데 이때 분포되어 있는 염결정의 크기는 40 μ 이하였다[32]. 상등액을 화학적 전처리하여 얻어진 슬러리를 40 wt% 까지 아스팔트 고화할 때 고체의 분포는 덜 균일하지만 결정의 덩어리는 아니다.

결론적으로 혼합된 폐기물 고형분의 입자크기가 작을수록, 분포의 균일성이 높을수록 아스팔트 고화체의 총괄 침출저항성이 높아진다.

(3) 함수율에 의한 영향

원래 물을 함유하는 폐기물(농축폐액, 폐수지, 필터보조물 등)을 아스팔트 고화처리할 때 고화체는 일반적으로 잔류물의 양을 0.5 wt% 이하로 함유해야 한다. 10 CFR 60 (Code of Federal Regulation)에서는 고화체를 받는 용기가

- 저탄소강 용기 : 함수율 0.5 wt% 이하
- 고강도 용기 (HIC) : 함수율 1 wt% 이하

로 규제되어 있다.

함수율이 높은 고화체는 높은 다공성을 지니며 특히 물에 용해성을 지니는 고화체는 높은 침출성을 나타낸다. 아스팔트 고화체가 산성 슬러리(이온교환수지 등)상태에서 만들어질 경우 같은 조건의 중성상태에서 만들어진 아스팔트 고화체 침출율을 보다 5~50배가 증가할 수 있는데 이것은 잔류물이 산성으로 남아 있을 수 있기 때문이다.

물에 담겨진 아스팔트 고화체는 물의 조성에 따라 흡수하는 물의 양이 다르다.

- 물의 흡수력은 비용해성염을 함유한 아스팔트에서 보다 용해성 염

을 함유하는 아스팔트에서 더 높다[14].

- 계면활성제가 아스팔트에 존재할 때 물을 가장 많이 흡수한다[14].
- 아스팔트 함량이 43과 60 wt%인 아스팔트 고화체는 1500일(약 4년)간 물에 담겨 있는 동안 56%의 물을 흡수한다[28].

(4) 아스팔트 종류에 의한 영향

- 일반적으로 연한 아스팔트로 만들어진 고화체의 침출률이 딱딱한 아스팔트로 만들어진 고화체의 침출률이 낮다.
- 직류 아스팔트(특히 Maxphalt 40/50)로 농축폐액을 고화한 고화체는 산화아스팔트로 고화한 고화체보다 침출율이 조금 낮다[45].
- 고화체의 아스팔트 표면층은 고화체 내부의 아스팔트 보다 물의 침투성에 대한 저항이 더 크다.

(5) 아스팔트 고화처리 조건에 의한 영향

다음의 조건은 폐기물 성분의 침출성에 영향을 줄 수 있다.

- 혼합온도
- 증발혼합시키는 장비와 적용된 조건들
- 아스팔트 유형

높은 혼합온도 (> 150℃)와 긴 접촉시간에서 폐기물의 성분(예를 들면 Sr-90과 Ca)은 아스팔트 성분과 반응을 할 수 있는데 일반적으로 폐기물 성분의 침출성을 상당히 감소시킨다. 그러나 120℃가 넘는 온도에서 음이온교환수지의 아스팔트고화처리는 아민(amine) 생성물을 초래하여 고화체의 침출저항성에 악영향을 미칠 수 있다. 농축폐액이 유화된 아스팔트안에 분산되는 공정은 용융된 아스팔트에 직접 혼합이 되는 공정보다 덜 균일한 아스팔트 고화체를 생산한다. 높은 온도(190~230℃)에서 만들어진

아스팔트 폐기물의 고화체는 잔류 함유율이 보통 0.5 wt% 이하로 감소되며 따라서 혼합된 무기고형분의 침출율을 감소시킨다[28].

(6) 침출저항의 개선

앞에서 이미 언급된 요인들과 상관없이 다음의 2가지 방법은 아스팔트 고화체의 총괄 침출성을 감소시킬 수 있다.

- 용기(container)의 물질과 설계
- 고화체의 추가적인 보호 재피막

순수 아스팔트로 고화체를 재피복(coating)함으로써 침출율의 상당한 감소가 여러 연구기관에서 증명되었다. (Eurochemic, KfK, CEA-Marcoule) 순수 아스팔트 H 80/90과 H 120/130를 6mm로 피막을 입힌 후 물에 담아서 1220일(3.3년) 동안 실험한 결과, 핵종의 침출을 완전하게 막았다[28]. 5mm 두께의 순수아스팔트로 피막된 아스팔트 고화체는 염의 침출이 2.5년 동안 일어나지 않았으며 5년후 재피막된 고화체는 침출율이 3×10^{-6} g/cm².day 이며 아스팔트로 재피막하지 않은 시료는 $10^{-4} \sim 10^{-5}$ g/cm².day 였다[46].

나. 방사선 안정성과 영향

아스팔트의 방사선 안정성에 영향을 주는 인자는 다음과 같다.

- 화학적 구조 (아스팔트 유형)
- 첨가물 (염, 용매, 수지 등)
- 방사선의 형태
- 총 선량
- 선량률
- 온도

- 주위 매체 (공기, N₂, 감압, 금속 등)
- 비표면적
- 조사동안의 기계적 힘

고에너지 방사선의 흡수는 조사된 물질 분자의 여기와 이온화에 영향을 주는데 주로 높은 반응성의 자유 radical(쌍을 짓지 않은 전자를 가진 원자나 분자) 형성에 영향을 준다. 이들 자유 radical은 다음의 반응에 기인하여 고화체의 물리적, 화학적 성질의 변화에 원인이 된다.

- 고분자의 분해
- 분자의 가교결합
- 혼합된 폐기물의 고형분과 주위 환경매체(공기)와의 화학적 반응
- 기체 생성물 같은 저분자 물질의 형성

따라서 방사분해 가스는 방사선에 의해 야기된 radical의 2차 반응 생성물이다. 형성된 가스(H₂, CH₄, C₂H_x 등)는 내부적 압박과 균열, 때때로 팽윤 역할만 할뿐이고 총 가스발생율은 고화체에 함유된 아스팔트의 성질에만 지배를 받는다.

- 비교할 수 있는 조건하에서 조사시키면 아스팔트는 polyethylene보다 수소를 적게 발생한다.
- 다소의 연구결과들이 차이를 보이거나 산화아스팔트가 다른 종류의 아스팔트 보다 방사성 저항성이 다소 낮다.
- 1×10^9 rad 까지의 내부 방사선 선량은 산화아스팔트 고화체의 심각한 변화요인이 되지 못한다. 예를들면 방사선 저항측면에서 모든 형태의 중준위 액체는 산화아스팔트로 고화시킬 수 있다.

다. 열안정성과 영향

아스팔트 고화체의 연소성과 폭발성 문제는 외부가열과 발화원인에

관련하여 생각할 수 있는데 아스팔트 고화체 준비, 중간저장, 최종저장 또는 저장장소로의 수송동안 매우 중요하다. 장기저장을 위해서 혼합된 핵종의 감쇄에 의한 고화체 내부가열은 방사분해 가스발생과 더불어 특별히 고려되어야만 한다. 예를들어 최대 허용비방사능을 발화할 수 있는 방사분해 가스 형성과 아스팔트 고화체의 유동성을 막기 위해 저장조건에 따라 제한되어야 한다.

아스팔트 고화체의 중심과 벽사이의 온도차이를 적게 하는 것이 필수적이며 이것은 최종고화체에서 허용할 수 있는 비방사능이 주로 고화체와 용기, 용기의 두께와 주변환경 사이 열전달조건에 의존한다는 것을 의미한다. 온도에 따라 조금씩 변하는 열전도도는 아스팔트에 고형분이 증가할수록 증가하는데 일반적으로 $0.25\text{W/m}\cdot^{\circ}\text{C}$ 정도이다. 감쇄열의 계산은 $10^3\text{Ci/m}^3(1\text{Ci}/\ell)$ 의 비방사능을 지닌 아스팔트고화체에 대하여 방출비열은 $3\sim 5\text{W/m}^3$ 이므로 자체가열이 처분방법을 특별히 제한시키지는 못한다. 핵분열 생성물을 함유하는 아스팔트 고화체의 온도는 $0.05\text{W}/\ell$ 의 비열로 200ℓ 드럼 중심에서 70°C 를 초과하지 않을 것이다.

저장온도는 아스팔트의 탄성을 유지시키고 아스팔트와 고형분의 분리가 되지 않도록 유지해야 한다. 아스팔트/ NaNO_3 고화체에 대해 저장온도는 60°C 를 초과하지 말아야 한다[14]. 200ℓ 드럼에 함유된 중준위 폐액($<10\text{Ci}/\ell$)의 아스팔트 고화체를 생각하면 핵종에 의한 열의 방출력은 $0.05\text{W}/\ell$ 정도로 고화체 중심에서의 온도는 70°C 이하 일 것이다. 70°C 이하의 온도에서는 고형분의 심각한 분리와 이동이 존재하지 않을 것이며 자발적 발화 또한 걱정하지 않아도 된다. 200ℓ 표준드럼에서 아스팔트 고화체가 만약 $10\text{Ci}/\ell$ 비방사능을 가진다해도 중심과 벽표면사이 온도차는 4°C 를 초과하지 않으며, 그런 고화체를 병커에 저장할 때 중심온도는 35°C 이하 일 것이다.

라. 침전과 균일성

아스팔트 고화체내 폐기물 고형분은 높은 온도에서 아스팔트 물질이 액화되어짐에 따라 바닥으로 가라앉는 경향이 있다. 뜨거운 아스팔트와 폐기물 고형분 혼합체의 느린 냉각속도($2\sim 3^{\circ}\text{C}/\text{hr}$)는 입자의 침전을 야기시키므로서 불균일성 고화체의 원인이 될 수 있다. NO_3 같은 산화제의 혼합은 침전에 의해 농축되어질 수 있다.

(1) 실험 결과

Eurochemic에서 실행된 실험은 직류아스팔트 55 wt%/ NaNO_3 45 wt%의 혼합물을 220 l 드럼에 180°C 의 온도로 190 l를 채우고 실온에서 평균 $2\sim 3^{\circ}\text{C}/\text{h}$ 로 냉각시켰을 때 아스팔트 매질안에서 NaNO_3 의 농도 변화를 조사하였으나 농도의 심각한 변화는 없었다. 스웨덴에서[29] 실행된 실험은 아스팔트-폐수지 고화용기에서 냉각되는 동안 이온교환수지의 침전이 관찰되었다. 고화체의 저장동안 염의 침전문제는 미국[47], 프랑스[28], 서독[35] 및 Eurochemic에서 연구되어 왔다.

불란서에서 실행된 실험에서 아스팔트 고화체가 각각 30°C , 62°C , 105°C 에서 1년간 저장되었다. 혼합된 고형분의 입자크기는 $1\sim 40\mu$ 범위였는데 저장온도가 고화체의 연화점에서 20°C 를 뺀 온도이하로 저장하면 염의 침전이 일어나지 않음을 알았다. 대부분의 아스팔트 고화체는 방사선 또는 다른 요인으로 인하여 단단하게 되며 시간이 지남에 따라 연화점이 증가하여 일반적으로 115°C 정도가 된다.

사용된 아스팔트 유형과 흡수된 방사선량에 따라서 고화체의 연화점은 $60^{\circ}\text{C}\sim 160^{\circ}\text{C}$ 범위가 된다. 연화점이 약 100°C 인 아스팔트내에서 저장온도가 40°C 일 때 30μ 입자의 침전속도를 계산하면 $5 \times 10^{-3} \text{ mm/year}$ 이하이다. 따라서 입자의 침전은 200년동안 1mm 이상이 되지 못한다[35].

(2) 저장조건

균일한 아스팔트 고화체는 혼합된 고형분의 침전과 고화체내의 심각한 불균일성을 피하기 위하여 60°C 이하의 온도 또는 그 고화체 연화점에서 20°C를 뺀 온도 이하에서 저장하여야 한다.

마. 연소성과 폭발성

많은 양의 아스팔트 고화체의 장기저장의 측면에서 고화체의 연소성과 폭발성에 관한 지식이 요구된다. 특히 고농도의 NO_3 를 함유하는 고화체의 저장과 생산공정의 안전측면에서 주의 깊게 평가되어야 한다. 이에 관련된 연구들이 여러나라에서 수행되었으며 부분별로 요약한다.

(1) 러시아: 실험결과 [33]

러시아에서의 실험은 아스팔트(BNK-2, BN-3) 7, 15, 20, 30 wt%를 사용한 아스팔트/ NaNO_3 고화체의 폭발성에 대한 것이다. 실험의 목적은 폭발이 가능하게 되는 고화체에서 아스팔트 함유량의 한계를 입증하는데 있다. 결과는 아스팔트 15 wt% 이하로 함유된 고화체에서는 폭발할 가능성이 있으며, 반면에 15 wt% 이상 함유한 고화체는 폭발하지 않는다.

부가적으로 NaNO_3 , KNO_3 , $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ 에 TBP, kerosene, 톨루엔, naphthalene 등 유기물질이 혼합된 고화체의 폭발성도 연구되었다. 결과는 유기물 함량이 6~15wt% 까지로 폭발성의 한계는 매우 좁다. 유기집합체와 NO_3 염의 조성변화는 이 폭발한계에 영향을 심각하게 미치지 않는다.

연소성은 NaNO_3 40 wt%/아스팔트(BNK-2) 60 wt%와 NaNO_3 wt%/아스팔트(BNK-2) 40 wt% 고화체 및 모사된 같은 비율의 발전소 폐기물이 사용되었는데 발화점(flash point)과 타는 온도(burning temperature)는 각

각 293°C와 345°C로 순수아스팔트의 발화점과 타는 온도값에 가까우며, 발화온도(self-ignition temperature)는 500°C를 넘는다.

이들 연구는 안전한 준비와 저장에 대해 입증된 조건들을 준수한다면 아스팔트에 대한 폐기물 고형분의 혼합은 화재위험을 증가시키지 않으며 화재와 폭발 가능성은 적다는 결론이다.

(2) 미국 : 실험결과 [48, 49]

고형분 60 wt% (35 wt% NO₃ 함유) 고화체에 대한 실험은 고화체가 각주의 연합통상 위원회 규정(Interstate commerce commission regulation)에 의해 정의된 위험물질의 분류에 들지 않는다. ORNL에서 다음과 같은 관찰 결과가 만들어 졌다.

공기속에서 550°C로 가열된 60 wt% 고형분을 함유한 고화체는 발화하지 않는다. 심지어 점화 니크롬선을 지닌 고화체도 N₂ 존재하에 535°C 까지에서도 발화되지 않았다. 고화체에 대한 태우는 실험은 격렬하게 타지만 폭발하지는 않았다. 타는 속도는 순수 아스팔트의 타는 속도보다 더 높다.

(3) 서독 : 실험결과 [7, 35]

연구는 주로 다양한 NO₃ 금속화합물과 농축폐액에 내포될 수 있는 다른 첨가물을 60 wt% 함유한 고화체로 실행되었다. 일반적으로 고화체의 발화온도는 400°C 이상으로 알려졌다. Ca(NO₃)₂ 분율이 높은 시료와 NO₃의 천이금속화합물만이 발화온도가 360°C ~ 380°C였다. 뜨거운 강철판(700°C)위에서 아스팔트 고화체는 순수 아스팔트보다 짧은 시간에 약 10배나 빨리 발화되었으며, 타는 시간은 비슷하였다. 순수 아스팔트는 평범하게 검은 연기를 내며 비교적 많은 잔유물을 남기는 반면에 아스팔트 고화체는 부분적으로 격렬하게 타며 적은 잔류물을 남긴다. 밀폐된 시스템에

서 빠른 가열은 심각한 폭발위험은 없다. 아스팔트 고화체는 기계적 또는 폭발 충격에 민감하지 않고 폭발하는 수소/공기 혼합상에 의해 발화되지 않는다. 175 ℓ 드럼에 담긴 57% 아스팔트/43% NaNO₃인 고화체 211kg의 총 연소시간은 85분으로 NaNO₃의 약 27%가 연기로 날아간다. CO₂가 가장 적절한 소화물질임이 입증되었다. 50 wt% 아스팔트와 경수로 발전소 폐기물인 이온교환수지, 세제, 높은 붕산함량을 지닌 농축폐액의 타는 온도는 400°C 이상 이었다. 발전소의 아스팔트 고화체는 NO₃가 없으므로 평온하게 타며 순수 아스팔트와 비슷하다.

이들 연구는 실험된 아스팔트 고화체가 폭발의 범주에 속하지 않으며 타기 쉬운 물질이 아님을 입증한다. 아스팔트 고화체를 담은 175 ℓ 드럼을 20cm 두께 콘크리트 용기에 넣고, 격렬히 타고 있는 불속에 50분 동안 넣는 화재실험(fire test)은 콘크리트 차폐용기가 외부의 화재에 대하여 효과적인 보호가능성이 있음을 입증시켰다. Table 16는 고화체의 조성에 따른 폭발열을 비교한 것이다.

Table 16. Comparison of heats of explosion

System (wt%)	Heat of explosion* (kcal/kg)	Oxygen balance (wt%)
Bitumen *** 13 NaNO ₃ 87	605	± 0
Bitumen 6 NH ₄ NO ₃ 94	925	± 0
Bitumen 20 NH ₄ HO ₃ 80	440	- 45.6
TNT	1,030	-63.9
Nitroglycerin	1,510	+ 3.5

* H₂O gas, constant volume.

** Mexphalt 15; 86.5 wt% C, 10.0 wt% H, 0.5 wt% N.

(4) 프랑스 : 실험결과 [50]

모든 아스팔트 고화체는 가연성이며 폭발은 하지 않는다. 자발적 발화온도는 대부분의 고화체가 350℃ 이상이다. 농축폐액의 산화하는 성분과 아스팔트 사이 발열반응 위험성은 열차분석(DTA ; differential thermal analysis)에 의하여 연구 되었는데 결과는 다음과 같다.

- 암모늄 이온의 부재하에서 대부분의 고화체가 분해를 시작하는 온도는 290℃ 이다. 이 온도는 다음과 같은 다양한 염의 무게 비율을 초과하지 않는다면 변하지 않는다.

25 wt% ammonium nitrate (NH_4NO_3)

37.5 wt% potassium chromate

37.5 wt% potassium chlorate (KCl)

45 wt% potassium dichromate

NO_2 이온, NaNO_3 , sodium borate, calcium borate과 같은 성분의 존재는 아스팔트 고화된 농축폐액의 열에 대한 안정성에 영향을 미치지 못한다.

(5) 결 론

발전소와 재처리폐기물의 고형분 60 wt% 까지 함유하는 아스팔트 고화체는 취급, 수송, 저장하는 동안 폭발하지 않으며, 300℃ 이상 가열하지 않으면 타지 않는다. 비록 NO_3 의 함량이 연소를 촉진하고 가속시키지만 심각하게 연소율을 증가시키기에는 불충분하다.

바. 기계적 안정성

아스팔트 고화체의 기계적 성질은 취급, 수송, 저장동안 중요한 인자이다. 높은 온도에서 아스팔트내에 폐기물을 혼합한 후 생긴 뜨거운 혼합체는 보통 200ℓ 드럼 용기에 붓는다. 채워진 드럼 온도 (약 160~190℃)

에서 cell 온도(약 20~30℃)까지 고화체의 냉각율은 1.3~3 ℃/hr로 평균 약 2 ℃/hr이다. 50wt% 고휘분 고화체의 연화점이 약 100 ℃ 정도이므로 완전한 고화체가 형성될 때까지 1.5~2일 정도 걸린다. 대기온도에서 24시간 냉각하면 어느정도 고화체의 바깥층이 응고되므로 드림이 넘어지는 경우에도 고화체가 흘러내리는 위험이 없어 드림 수송작업을 하기에 충분하다.

아스팔트에 폐기물 고휘분의 혼합은 연화점의 증가, 아스팔트의 침입도 및 신도의 감소에 영향을 준다. 혼합, 고착하는 동안 일어나는 반응은 점성, 성형력 고체의 조성을 포함하여 매우 복잡하다. 아스팔트 고화체의 기계적 안정성은 아스팔트 유형의 선택, 폐기물 고휘분과 첨가분의 성질, 고휘분과 아스팔트 비율 등 상당히 많은 인자에 영향을 받는다.

(1) 실험결과

기계적 안정성은 아스팔트 고화체가 일정한 압력하에서 20, 30, 40 ℃의 온도변화조건에서 연구되었다[51]. 연화점이 다른 모든 고화체에서 변형이 있는데, 압력하에서는 연화점이 110℃ 이상인 고화체도 장기 저장동안에 형성 안정성이 없었다. 이온교환수지의 혼합은 아스팔트의 점도와 형태 안정성을 증가시키는데 특히 산화 아스팔트에서 두드러진다. 표준 침입도 측정법과 Ring and Ball 법에 의한 연화점은 아스팔트/폐수지 고화체에 대해 일괄된 결과는 얻지 못한다. 따라서 "cylinder bending test"와 "hole migration test" 방법이 아스팔트/폐기물 고화체의 형태안정성 측정 방법으로 개발되었고, -40℃ 및 -40℃와 20℃ 사이를 순환하는 온도에 대해 연속된 노출영향이 연구되어졌다[52]. 일본에서는 처리된 저준위 폐기물의 해상처분과 아스팔트 고화체 포장(200 l)의 표준화와 관련한 연구가 해저 7000m 에서 수압인 700 kg/cm²까지를 포함한 여러 충격에 대한 충분한

강도의 폐기물 포장을 위한 연구가 수행되었다. 아스팔트 50~70 wt%와 경수로 폐기물(폐수지 20 wt%, 필터 보조물 10 wt% 및 농축폐액의 잔류 고형분 20~50 wt%)을 포함하는 고화체를 사용한 시험에서 다음과 같은 결과를 얻었다.

- 이온교환수지와 필터 보조제는 요구되는 최소한의 밀도 1.2에 도달하기 위해 농축폐액과 혼합하여야 한다.
- 아스팔트 고화체의 포장은 700 kg/cm^2 수압까지 파괴되지 말아야 한다.
- 1.2m 높이와 9.0m 높이에서 아스팔트 고화체를 대기중으로 자유낙하시키면 아스팔트 고화체의 탄성때문에 시멘트 고화체 보다 낙하 충격에 더 강하며, 해상처분시 물표면과 해저바닥에서 충격에 견딜수 있다.
- 9m높이에서 낙하된 포장물은 변형되지만 폐기물은 흩어지지 않는다.
- Na_2SO_4 , Na_2CO_3 , NaNO_3 를 포함하는 고화체는 해상처분시 붕괴하여 팽윤하기 때문에 함유율이 40~50%를 초과하지 말아야 한다.

(2) 결 론

아스팔트 고화체의 기계적 성질은 고화체의 부피조성(고형분, 아스팔트, 빈공간의 용적), 아스팔트 유형(아스팔텐 함량, 침입도), 온도, 혼합된 고형분의 특성(입자크기, porosity)에 의존한다. 따라서 기계적 안정성은 성분의 적절한 선택, 혼합 및 저장의 조건에 의하여 폭넓게 영향을 받는다.

사. 팽윤

저장된 아스팔트 고화체의 팽윤에 대한 주요 원인 3가지는 다음과 같다.

- 방사분해에 의한 고화체 내부의 가스 형성

- 화학적 반응
- 고화체 주변으로 부터 물의 흡수

팽윤의 정도는 첫 번째 경우는 비방사능에 의해 결정되며, 두 번째와 세 번째 경우는 고화체의 화학적 조성과 인접한 주위의 물과의 접촉정도에 의해 결정된다. 방사분해 가스에 의한 팽윤율은 방사분해 가스의 발생율보다 낮으며 팽윤율은 $0.2 \text{ cm}^2/\text{g} \cdot 100 \text{ Mrad}$ 정도이다. 부피증가는 아스팔트 고화체의 방사선 안정성의 측정수단으로서 사용될 수 없다는 점이 강조된다.

혼합된 물질이 아스팔트 고화체의 팽윤 원인인 경우는 다음과 같다.

- 상당한 양의 물과 결합할 수 있는 (결정수) 무수의 염
- 다량의 세제 (6 wt% 이상)
- 고화체에 50 wt%를 초과하는 건조 이온교환수지의 함유

팽윤은 기체상의 반응생성물을 초래하는 화학적 반응에 의하여 일어날 수 있다. 예를 들면 잔류산성물(H_2)은 혼합된 탄산염과 반응한다.

(1) 실험결과

다음과 같은 결과가 관찰되었다.

- 38 wt% CaCO_3 (calcium carbonate)를 함유하는 시료는 물에 15일 침수시키면 최초부피의 두배로 팽윤되었다[14].
- 17~44 wt% Na_2CO_3 (sodium carbonate)를 함유하는 시료는 1~2주 내에 완전히 파괴가 될만큼 10배 수화물을 형성하여 증류수나 지하수에서 팽윤되었다[46].
- 60 wt% 고형분을 함유하는 (대개 Na_3PO_4) 고화체는 30일후 점차적으로 팽윤이 시작되며 높은 침출율을 초래하였다.
- 심지어 11 wt% 염(주로 Na_3PO_4)를 함유하는 고화체도 25°C 물에

약 6개월 침수시킨 결과 팽윤되었다.

- 건조 이온교환수지 70~80wt%를 함유하는 시료는 공기중에서도 팽윤되었다[52].
- 50~60 wt% 건조 이온교환수지를 함유하는 시료는 증류수에 2~3개월 침수시키면 최초 부피의 2배로 팽윤된다.
- 가교제 DVB (divinyl benzene) 8% 이상을 함유한 이온교환수지의 물에 대한 최대팽윤은 조사되지 않은 수지보다 조사된 수지가 약 1.4배 높다.

(2) 결론

저장된 아스팔트 고화체의 부피 변화는 가능한 한 낮아야 한다.

다음 조치는 과도한 부피증가의 위험성을 줄일 수 있다.

- 많은 결정수를 갖는 알칼리염을 형성하는 음이온은 낮은 함수율 또는 물이 없는 불용성 염으로 전환하여야 한다.
- 습기를 빨아들이는(hygroscopic) 물질의 함량은 낮게 유지하여야 한다.
- 순수 아스팔트 층은 물의 침입을 감소시키고 지체시킨다.
- 산화 아스팔트는 누적 방사선량이 5×10^7 rad 이상에서도 사용이 가능하다.
- 증발혼합온도에서 이온교환수지와 아스팔트의 접촉 체류시간이 길면 수지의 부분적 열파괴가 이루어 지며 물에 적게 팽윤되는 결과를 낳는다.

제 3 장 안정된 아스팔트 고화체 제조방안

제 1 절 실험재료

1. 아스팔트

가. 아스팔트 고화매질의 장.단점

다른 고화매질과 비교하여 아스팔트 고화매질이 가지는 장.단점을 요약하면 다음과 같다.

○ 장 점

- 경험이 풍부하고 안정된 기술
- 활성이 없어 접촉하는 물질과 뚜렷한 반응을 하지 않음
(폐기물의 조성, pH 변화 등의 제약이 없어 처리 대상의 폭이 넓음)
- 방수성이 높고 침출 저항성이 크다.
- 매질의 가격이 저렴
- 감용율이 높음(고화에 의한 부피 증가가 없음)

○ 단 점

- 형태 안정성이 없음
- 흡수성 물질(hygroscopic substances) 처리시 팽윤현상
- 화재 위험성이 있음
- 10^8 rad 이상의 방사선을 조사하면 H_2 , CH_4 등 gas 발생

폐기물 내에 Zn, Pb, Cu 또는 염소화합물이 존재하면 시멘트의 응결반응

을 지연시키는 등 폐기물 조성이 변할 때 시멘트 고화는 품질관리를 조절하기 힘들다. 아스팔트는 활성이 없어 접촉하는 물질과 뚜렷한 반응을 하지 않으므로 폐기물의 조성, pH 변화 등 제약이 없어 처리대상 폐기물의 폭이 넓다. Fig. 13은 아스팔트 고화의 pH 허용범위를 나타낸 것으로 pH 3~13까지 넓은 pH 범위를 수용할 수 있다[53].

아스팔트는 오래전부터 방수제로 널리 사용되고 있으며, 수증기의 투과도는 Fick의 확산법칙에 의하여 구할 수 있는데 확산계수 D 는 1 mmHg의 증기압차에서 표면적이 1 cm^2 이고 두께가 1 cm의 층을 통과하여 1시간동안 확산하는 수증기의 양으로 나타낸다. 25°C 에서 전형적인 아스팔트의 확산계수는 약 $1.3 \times 10^{-8} \text{ cm.hr.mmHg}$ 로 매우 좋은 방수제이다. Fig. 14는 이온교환수지를 여러가지 고화제로 고화했을 때 Co-60의 누적 침출분율을 나타낸 것이다[54].

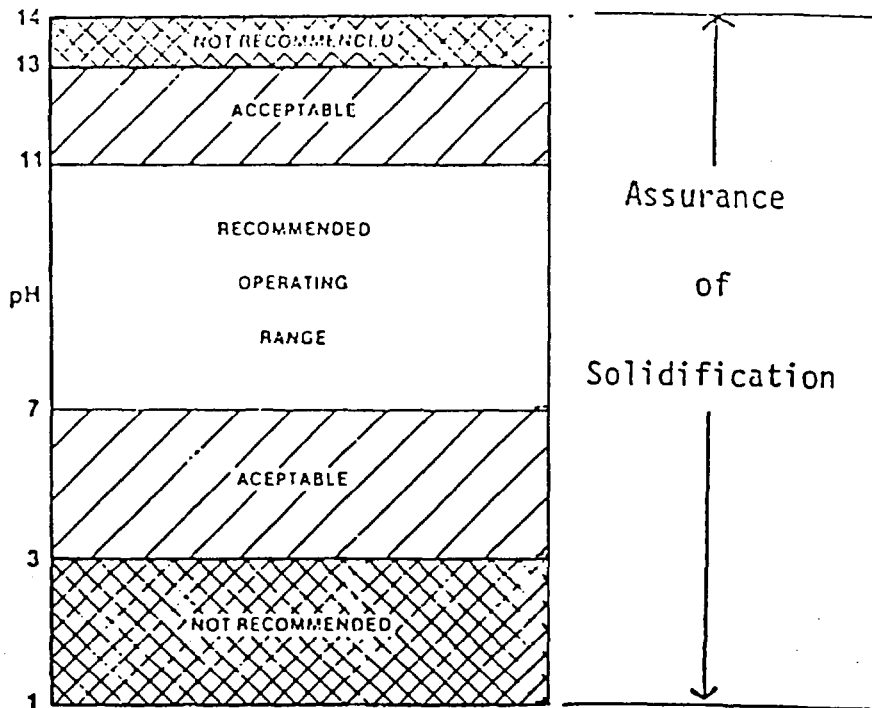


Fig. 13. Asphalt extruder/evaporator process pH range

아스팔트 고화체는 이온교환수지의 높은 함유율에서도 침출분율은 시멘트나 폴리머 고화체 보다 높은 침출저항성을 나타낸다. 고화매질인 아스팔트는 석유산업의 부산물로 얻어지며 우리나라와 같이 정유산업이 발달한 나라에서는 상대적으로 공급량이 많으며 값이 싸고 구하기도 쉽다. 한국 원자력연구소의 박막증발기형 고화장치에 사용하는 아스팔트는 도로포장용 AC 60/70을 사용하며 200kg 드럼당 35,000원에 구입한다. 시멘트가 3,000원/40kg인데 비하여 다소 비싼 편이나 다른 고화체에 비하여 가격은 저렴하다. 시멘트 고화체는 고화에 따른 부피증가의 단점이 있지만 아스팔트 고화는 고화에 따른 부피의 증가가 없으며 폐기물에 따라서는 오히려 부피 감소 효과가 있다. 폐기물의 높은 함유율과 감용율은 수송비와 처분비용을 절감하는 효과가 있다. Fig. 15는 다양한 고화매질에 의한 고화에 따른 부피변화를 나타낸 것이다[57].

아스팔트 고화매질의 단점은 형태 안정성이 없으며, 흡수성 물질(hygroscopic substances)을 많이 함유할 경우 팽윤현상이 일어난다. 따라서 결정수를 흡수하는 무수염, 즉 Na_2CO_3 , Na_2SO_4 , Na_3PO_4 등의 염의 함유량은 10 wt% 이하로 규제하고 있다[9]. 또한 화재위험성이 있는데 아스팔트의 가연성은 방사성 폐기물의 고화매질로서 중요한 결점이되고 있다. 그러나 아스팔트 그 자체는 가연성 물질로 분류되지 않으며 발화점은 200~320°C 범위이다.

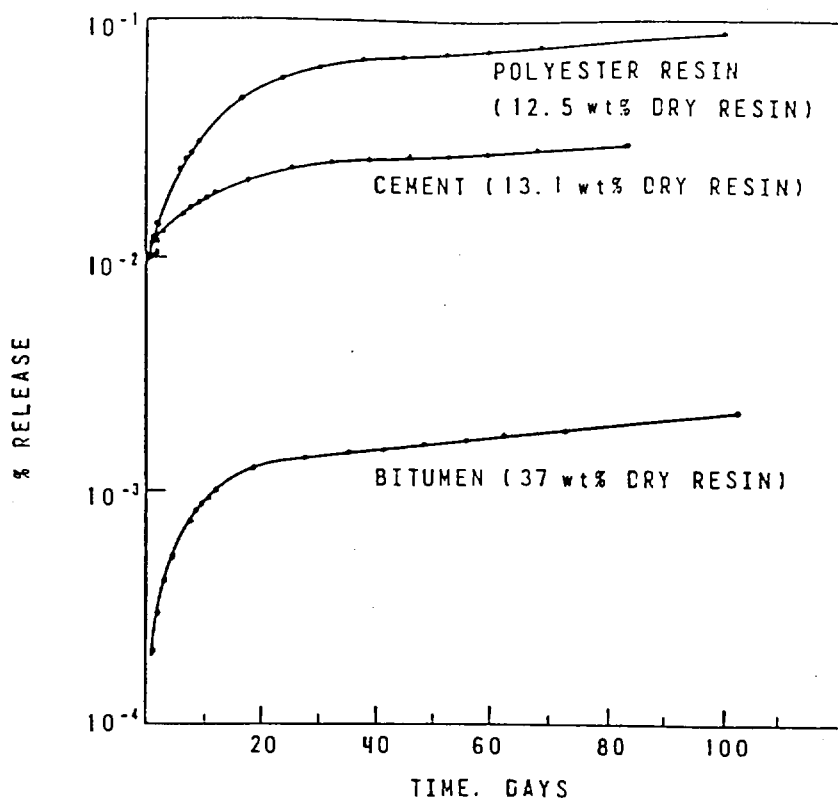


Fig. 14. Co-60 Release from immobilized ion exchange resin

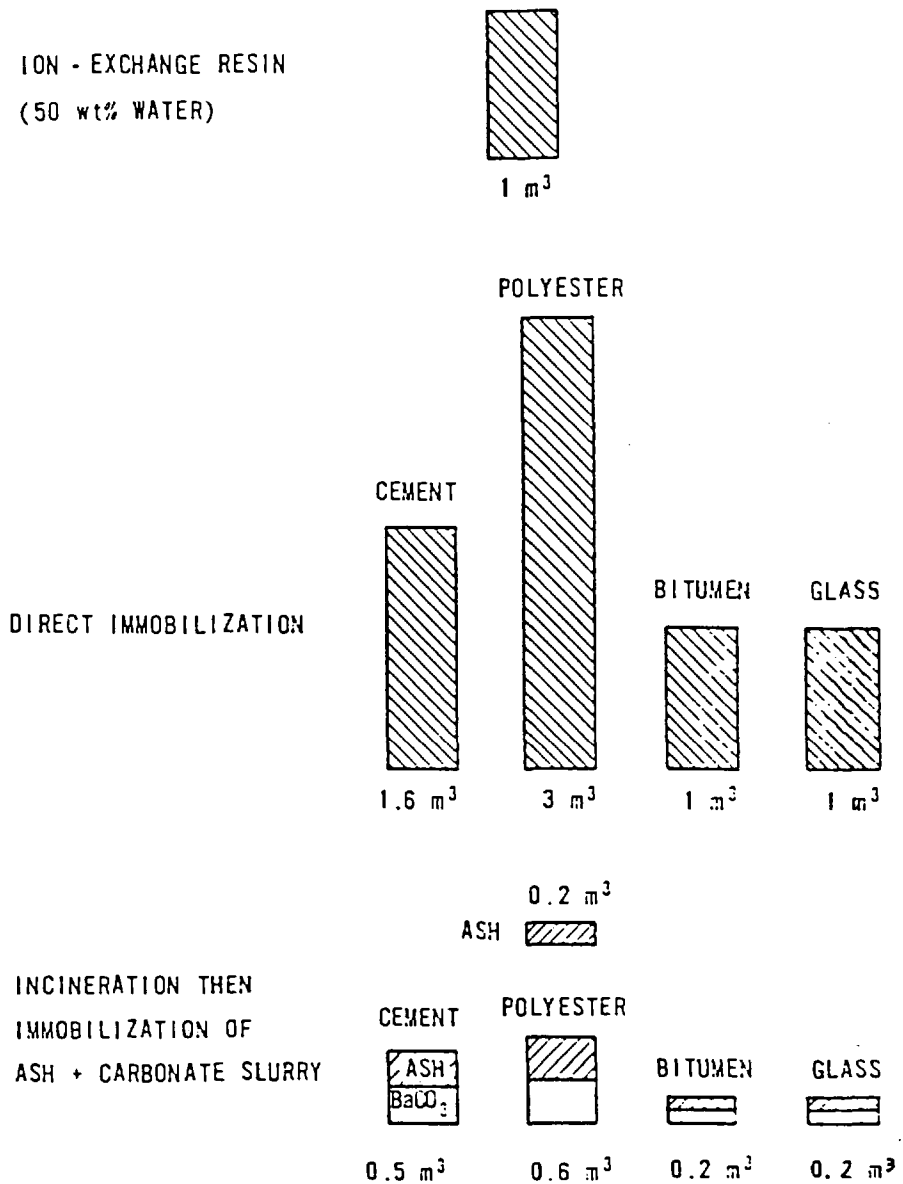


Fig. 15. Comparison of volume generated by different processing techniques

방사성폐기물의 아스팔트 고화 연구가 시작된 1970년대에 몇번의 화재가 발생하였으며, 이것에 대한 연구는 여러나라에서 가장 많이 이루어진 분야로 요약하면 다음과 같다[36].

- 재처리 공정과 핵연료주기시설의 습식공정은 HNO_3 와 TBP(tributyl phosphate)에 의한 추출공정이다.
- 재처리 공정과 핵연료 주기시설의 농축폐액의 주성분은 NaNO_3 이다.
- 강 알칼리성($\text{pH} > 3$) NaNO_3 용액의 아스팔트 고화는 발화온도가 낮아진다.
- NaNO_3 , NaNO_2 가 동시에 존재하는 용액에 Fe^{+3} 의 무수염 1% 이상 또는 유기물의 함유는 아스팔트 고화체의 열역학적 안전도를 낮춘다.
- 아스팔트 고화장치의 전기에 의한 가열은 국부적 가열을 일으킬 수 있다.

질산을 많이 사용하는 재처리공정에서 발생하는 폐기물의 주성분은 NaNO_3 인데, NaNO_3 의 용융온도 315°C 이고, $\text{NaNO}_3 + \text{NaNO}_2 +$ 유기물의 강알칼리 용액하에서 발화온도가 낮아져서 전열기에 의한 국부적 가열로 이 온도를 초과하는 경우로 판단된다. 이에 따라 가열방식을 개선하여 열매체유로 가열하고, 원자력발전소 폐기물에서는 더 이상의 사고는 없었다.

나. 실험에 사용하는 아스팔트

국내 정유회사에서 직접 생산되는 아스팔트는 도로포장용 직류 아스

팔트로 침입도 85/100 이 대부분이며, 침입도 60/70인 직류 아스팔트는 쌍용정유에서만 생산한다. 다양한 형태의 아스팔트는 중소기업들이 정유회사에서 생산된 직류 아스팔트 85/100을 사용하여 산화 또는 용제의 첨가 등으로 용도에 맞는 여러 가지 형태의 아스팔트를 생산하며, 따라서 가공에 따른 비용이 추가된다.

실험에 사용되는 아스팔트는 침입도 60/70인 직류 아스팔트로 정유회사에서 직접 생산되는 가장 낮은 침입도를 갖는 아스팔트이다. Table 17은 직류 아스팔트 60/70의 물리적 특성을 나타낸 것이다.

Table 17. Physical properties of asphalt 60/70

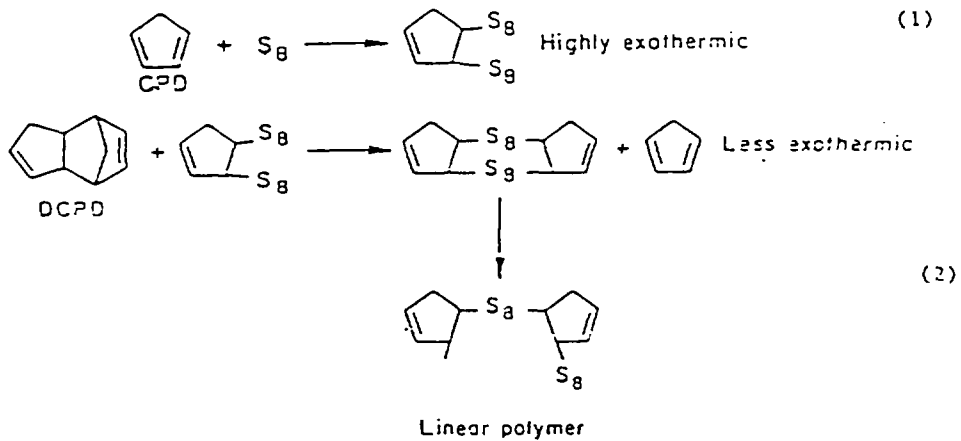
Description : Asphalt cement AC 60/70 (AP-5) KS M 2201			
Penetration	25°C, 100g, 5s	1/10 mm	63
Softening Point	Ring and Ball	°C	48.8
Flash Point	Cleveland Open Cup	°C	328
Ductility	25°C, 5 cm/min	cm	150
Solubility in trichloroethylene		%	99.8

2. 고화보조제

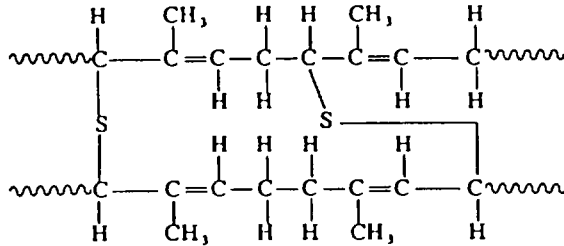
가. 황(sulfur)

황은 폐가스와 석유 증발공정의 정제 부산물로 또는 화력발전소의 탈

황에 의한 부산물로 얻어진다. MSC(modified sulfur cement)는 아스팔트와 같은 열가소성 물질로 1972년 미국 Bureau of Mines에 의해 폐가스와 석유 증류공정으로 부터 발생하는 폐황(waste sulfur)을 재사용할 목적으로 개발되었다. MSC는 같은 양의 DCPD(Dicyclopentadiene)와 CPD(Cyclopentadiene)로 구성되는 modifier를 총 5wt% 혼합하여 만들며 용융점은 119°C이다. 황은 가교제 역할을 하는데 다음과 같다[56].



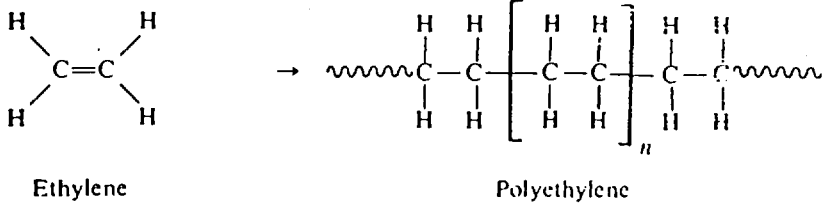
또한 황은 고무화학에서 Vulcanization의 가교제로 널리 사용되는데 다음과 같이 작용한다.



황의 일반적 형태는 α -sulfur(orthorhombic form)로 존재하는데 용융점은 112.8°C 이다. 다양한 분자량을 가진 복합체인 아스팔트에서도 가교제로 작용할 수 있다.

나. Polyethylene

폴리에틸렌은 포화지방족 탄화수소계 폴리머이며 화학적으로는 고분자량의 파라핀으로 볼 수 있다. 폴리에틸렌은 화학적으로 매우 안정된 플라스틱이며, 많은 약품에 잘 견디는데 할로젠이나 강산화성 물질에는 침식된다. 방향족 탄화수소 및 염화 탄화수소계의 용제는 70°C 이상에서 용해하지만 상온에서는 저항성이 있다. 폴리에틸렌의 성질은 밀도에 따라서 차이가 있는데 $0.91\sim 0.925\text{ g/cm}^3$ 을 저밀도 폴리에틸렌(LDPE), $0.926\sim 0.94\text{ g/cm}^3$ 을 중밀도 폴리에틸렌(MDPE), $0.941\sim 0.965\text{ g/cm}^3$ 을 고밀도(HDPE)로 분류한다. 수증기, 기체, 액체의 투과율은 밀도가 증가할수록 낮으며, 충격강도 또한 낮아진다. 밀도가 커지면 인장강도는 증가한다. 폴리에틸렌의 화학구조를 보면 다음과 같다.



폴리에틸렌은 일반적으로 열안정성은 좋은 편인데 산소에 접촉하지 않을 때는 290℃ 까지 용융할 뿐 안정하며 300℃ 이상에서는 분해를 개시한다. 연화온도는 저밀도 일때는 105℃, 고밀도일때는 124℃ 정도이다. Table 18 는 밀도에 따른 폴리에틸렌의 성질을 요약한 것이다[57].

폴리에틸렌은 염화비닐수지등 다른 수지에 비하여 상대적으로 O₂, CO₂ 등 기체의 투과도가 높아서 특용작물 재배에 필요한 농업용 필름의 재료로 적합하다. 국내의 농업용 필름은 약 90%가 폴리에틸렌으로 만들어지며 사용 수명은 1~2년으로 폐기물로 발생하는 양은 약 90,000 ton/yr 이다. 농업용 필름은 자외선에 대한 저항이 커야 하므로 폴리에틸렌에 소량의 자외선 흡수제 등 열 안정제를 첨가하여 만든다. 폴리에틸렌으로 만들어진 폐기 농업용 필름을 고화 보조제로 사용한다는 전제하에 폴리에틸렌을 고화 보조제로 사용한다.

실험에 사용될 폴리에틸렌은 농업용 필름제조에 주로 사용되는 저밀도 폴리에틸렌(LDPE) 및 농업용 폐비닐을 사용한다.

Table 18. Properties of polyethylene

Property	Low density	Medium density	High density
Compression moulding temperature	135~177°C	150~315°C	150~230°C
Density	0.91~0.925g/cm ₃	0.926~0.94g/cm ₃	0.941~0.965g/cm ₃
Tensile strength	-	-	18.61~24.82 MPa 2700~3600 lb/in ²
Water absorbance (24 h, 1/8 in thick)	<0.01%	<0.01%	<0.01%
Flammability(burn rate)	1.04 in/min	1.00~1.04 in/min	1.00~1.04 in/min
Average extent of burning	0.8 in	0.6 in	-
Average time of burning	<5~25 s	10~60 s	-
Effect of weak acid	Resistant	Very resistant	Very resistant
Effect of strong acid	Attacked by oxidizing acids	Attacked slowly	Attacked slowly
Effect of weak alkalies	Resistant	Very resistant	Very resistant
Effect of strong alkalies	Resistant	Very resistant	Very resistant
Effect of organic solvents	Resistant below 60°C except to chlorinated solvents	Resistant below 60°C except to chlorinated solvents	Resistant below 80°C

제 2 절 실험장치 및 방법

1. 실험장치

회분식 Pot형 아스팔트 고화장치는 아스팔트 고화장치 중에서 가장 단순한 형태이며 폐기물에 포함된 입자의 크기가 미세하지 않아도 장치에 손상을 주지 않으므로 입자가 있는 폐기물에 적합하며 유지관리가 편리하다. 실험장치는 회분식 pot형으로 반응기 용량은 4ℓ이며 내경이 18.7 cm 이다. 반응기는 이중벽으로 만들어 벽속에는 열매체유가 들어 있으며 열매체유에 의해 반응기 내부의 모든 벽에서 온도가 일정하게 유지되며 국부적인 과열을 방지할 수 있다. 열매체유는 전기에 의해 가열되며 25℃~240℃ 까지 조절이 가능하다.

Mixer는 DC 모터에 의해 70~550 rpm 까지 조절이 가능하며 3개의 날개에 의하여 혼합한다. 3개의 날개가 붙어 있는 원통안에는 혼합물의 온도를 감지하는 온도 센서가 있고 폐액을 공급할 수 있는 관이 설치되어 있다. 또한 mixer 아래부분의 스크루우는 혼합물을 배출할 때 도움이 되도록 설계하였다.

반응기의 뚜껑은 유압에 의해 열고 닫으며 반응기가 밀폐될 수 있도록 하였다. 반응기 뚜껑에는 증발되어 나오는 증기를 응축할 수 있도록 냉각수가 순환하는 응축기를 설치하였다. Fig. 16은 실험장치를 나타낸 것이다.

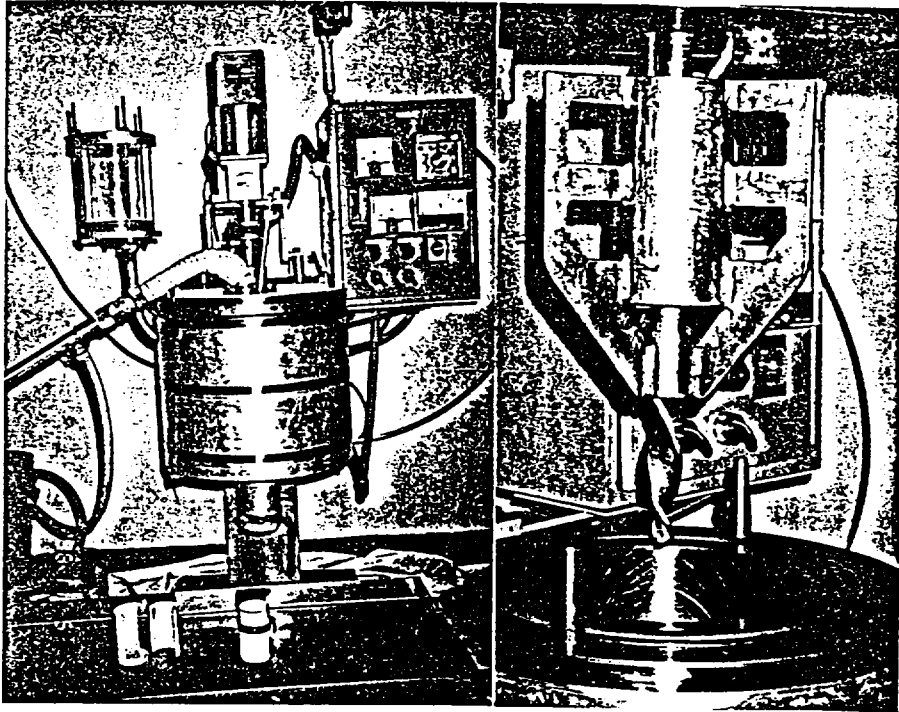


Fig. 16. View of heated mixing vessel and mixing blade for the production of laboratory scale asphalt waste forms

2. 실험방법

아스팔트는 주어진 온도에서 고화제보조 및 폐기물을 첨가함에 따라 점도가 증가한다. 아스팔트 고화과정중에서 pot형과 박막증발기형은 아스팔트 혼합물을 드럼에 배출할 때 중력에 의존하기 때문에 혼합물의 점도는 중요하다. 제작된 실험장치에서 변화시킬 수 있는 온도범위내에서 혼합과 혼합물의 배출이 가능한지는 온도에 따른 혼합물의 점도가 지표가 된다.

고화체 형태 안정성은 침입도, 연화점, 특히 압축강도 및 침수실험으로 평가 할 수 있다. 아스팔트, 고화보조제, 폐기물의 무게를 달아 반응기에 넣고 서서히 열매체유를 가열하여 실험온도로 고정하고 교반기의 회전수를 150rpm 으로 고정한다. 실험 반응시간동안 반응을 시킨 다음 교반기의 회전수를 50rpm으로 고정한다 실험항목에 맞도록 각각의 용기에 시료를 받는다. 압축강도와 실온에서 장기 노출실험의 고화체는 내경 5cm, 높이 8.5 cm인 테프론으로 제작된 mold에 받아 실온에서 24시간 냉각시킨다. mold를 제거한 시료로 압축강도와 실온에서의 장기 노출실험을 실시한다.

가. 실험항목

- 작업도
 - 보조 고화제 종류와 첨가량 변화에 따른 점도
 - 보조 고화제 종류와 첨가량에 따른 혼합 및 혼합물 배출가능성
- 고화체 형태 안정성
 - 보조 고화제 종류와 첨가량 변화에 따른 혼합물의 침입도
 - 보조 고화제 종류와 첨가량 변화에 따른 혼합물의 연화점
 - 보조 고화제 종류와 첨가량 변화에 따른 혼합물의 압축강도
 - 보조 고화제 종류와 첨가량 변화에 따른 혼합물의 장기 노출실험

나. 분석방법

(1) 점도

Brookfield Viscometer와 ASTM Spindle을 사용하며 25℃ ~240℃ 까지 시료의 온도를 일정하게 유지할 수 있는 Thermocell System을 부착하여 점도를 측정한다.

(2) 침입도 : ASTM D5

100g의 추가 부착된 바늘이 25℃ 실온에서 5초동안 침투한 깊이를 mm 단위의 10배로 나타낸다.

(3) 연화점 : ASTM D36

Ring and Ball 방법에 의하여 측정한다.

(4) 압축강도 : ASTM D10740-83

Universal multitest machine (Model: Zwick 1445)을 사용하며, ASTM에서 규정한 고화체 시료 높이에 대하여 0.05 in/min.in 의 압축속도로 압축시켜 고화체가 10% 변형되었을 때의 강도를 측정한다.

(5) 장기 노출실험

고화체 시료를 실온의 대기중에 장기간 놓아 두고 고화체 형태의 변화를 관찰한다.

제 3 절 예상결과

1. 연구배경

고화체 그 자체의 품질은 1차적으로 인간의 생활공간으로 폐기물 성분이 확산되는 것을 막거나 지체시키는데 중요한 역할을 한다. 방사성폐기물 고화체로써 갖추어야 할 주요특성은 다음과 같이 5가지로 요약될 수 있다.

- 침출 저항성
- 방사선 저항성
- 형태 및 기계적 안정성
- 화재 저항성
- 고화체 제조, 수송, 처분의 비용

고화매질에 따른 고화체의 특성을 비교하면 Table 19과 같이 요약된다[58].

Table 19. Comparison of the properties of Immobilized waste forms

Leach resistance	Cement < Polymers < Bitumen < Glass
Radiation resistance	Polymers < Bitumen < Cement < Glass
Mechanical stability	Bitumen < Polymers < Glass < Cement
Fire resistance	Bitumen ≤ Polymers < Cement < Glass
Costs	Glass > Polymers > Bitumen > Cement
(taken from TABLE XVI in [IAEA, 1985])	

Table 19에서 보는 바와 같이 아스팔트 고화체는 침출저항성과 고화체 제조, 수송, 처분의 비용면에서 뛰어나다. 그러나 형태 및 기계적 안정성과 화재의 저항성에 있어서는 불리하며 방사성폐기물이 아닌 유해 산업폐기물에 적용할 경우, 방사선 저항성은 제외되는 항목이다.

형태 및 기계적 안정성은 매립지 또는 최종 처분장에서의 고화체 장기 안정성과 밀접한 관계가 있다. 아스팔트 고화체의 형태 및 기계적 안정성은 고화체 드럼에 1차적으로 의존하며 장기 안정성을 확보하기 위해 매립지 또는 처분장에 대한 공학적 보강이 필요하다. 형태 및 기계적 안정성의 결핍으로 야기되는 또 다른 문제점은 아스팔트 고화체가 물과 접촉했을 때 팽윤이 일어나며 팽윤은 결국 침출율을 증가시킨다. Fig. 17은 팽윤에 의한 침출의 증가를 나타내고 있다[59]. 또한 형태 안정성의 결핍은 아스팔트 고화체의 침출 특성을 평가하는데 장애요인으로 지적된다. 침출수에 담겨진 고화체가 형태를 유지하지 못하여 침출 단면적이 변하기 때문이다.

아스팔트 고화체의 방사성폐기물에 대한 적용은 아스팔트의 높은 침출 저항성과 고화에 따른 부피 증가가 없는 장점 때문에 적용되고 있는데 폐이온교환수지의 경우 원자력발전소에서는 이온교환수지가 5~10 wt% 함유된 시멘트 고화체를 제조하고 있는데 반하여, 원자력 연구소에는 40 wt% 함유된 아스팔트 고화체를 제조하고 있다. 방사능의 차폐와 형태 안정성을 유지하기 위하여 일본과 한국에서는 탄소강 드럼에 콘크리트가 보강된 고화체 용기를 사용하고 있다. Fig. 18은 탄소강 드럼에 콘크리트가 보강된 고화체 용기의 단면도이며 콘크리트 두께만큼 아스팔트 고화체의 감용 효과가 있다[21].

아스팔트 고화체의 장점은 그대로 유지하면서 그 형태 안정성 및 기계적 강도를 시멘트고화체 만큼 향상시킴으로써 아스팔트 고화체의 팽윤방지 효과, 감용을 증대 및 처분시 공학적 보강을 필요로 하지 않는다. 따라서 고

화체 자체의 장기적 형태 안정성을 유지할 수 있는 연구가 필요하다.

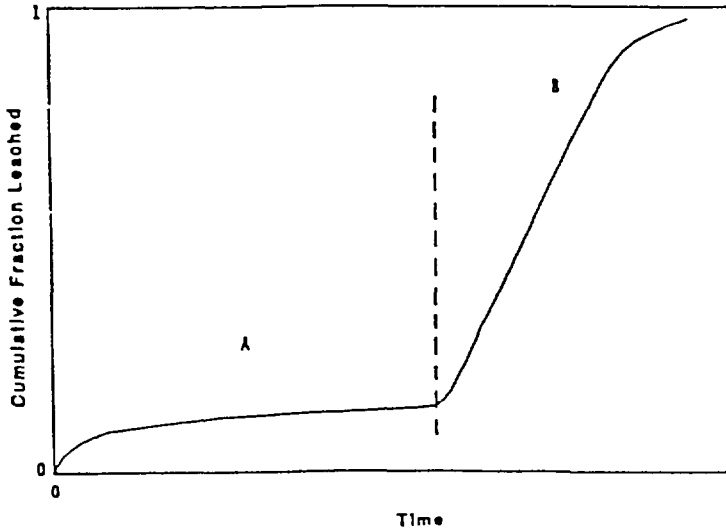


Fig. 17. Schematic model of expected leaching behavior of bitumen waste forms incorporating soluble waste and/or waste which swells upon hydration. The dashed vertical line separates Region A, in which no swelling has occurred and region B, in which there has been enough water uptake to cause swelling.

2. 연구목적

형태 및 기계적 안정성은 매립지 또는 최종 처분장에서 고화체의 장기 안정성과 밀접한 관계가 있다. 공학적 방법에 의한 형태 및 기계적 안정성 확보 방법은 아스팔트 고화체의 부피 감용효과를 크게 격감시키며, 또한 비용도 증가시킨다. 첨가제 또는 고화보조제를 이용하여 고화체의 형태 및 기계적 안정성을 확보하는 방법은 아스팔트고화체의 장점을 그대로 유지할 수 있다. 특히 폐기된 농업용 필름등 폐기물을 고화보조제로 사용하면 재활용과 비용 측면에서 유익하다.

농업용 필름의 원료인 polyethylene 이나 polymer 가교제인 황을 고화보

조제 또는 첨가제로 사용하여 첨가량의 변화, 반응온도의 변화 등의 인자와 제작된 장치의 작업가능성을 비교 분석하여 시멘트 고화체 만큼의 압축강도를 지닌 안정된 아스팔트 고화체 제조방법을 개발하는데 목적을 둔다.

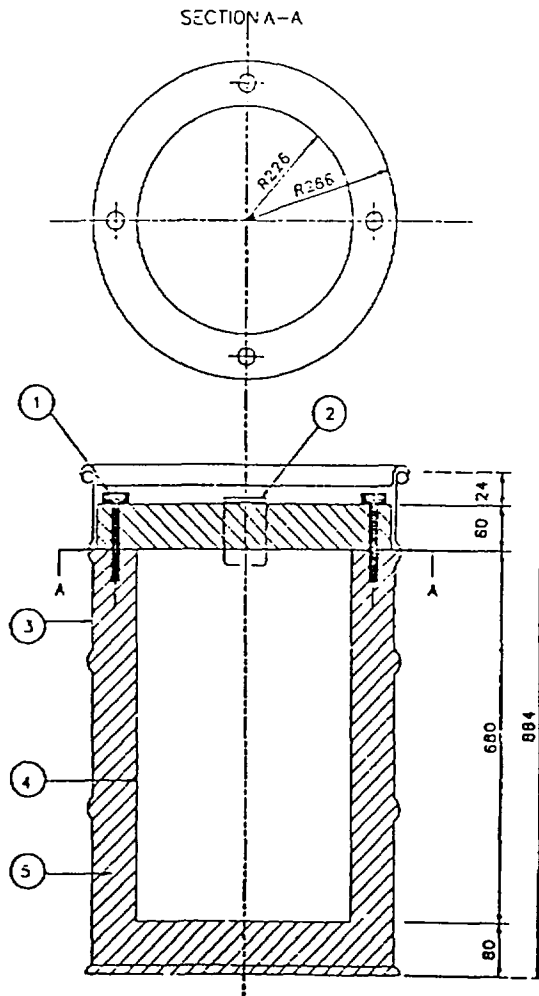


Fig. 18. Simplified diagram of an enforced concrete-steel drum

제 4 장 결론 및 향후 기대효과

고화체자체의 품질은 1차적으로 인간의 생활공간으로 폐기물 성분이 확산되는 것을 막거나 지체시키는데 중요한 역할을 한다. 따라서 방사성폐기물 고화체로써 갖추어야 할 주요 특성은 형태 및 기계적 안정성, 침출 저항성, 방사선 저항성, 안정된 고화체 제조 및 처분등으로 요약될 수 있다.

1. 형태 및 기계적 안정성은 매립지 또는 최종 처분장에서의 고화체 장기 안정성과 밀접한 관계가 있다. 아스팔트 고화체의 형태 및 기계적 안정성은 고화체 드럼에 1차적으로 의존하며 장기 안정성을 확보하기 위해 매립지 또는 처분장에 대한 공학적 보장이 필요하다. 형태 및 기계적 안정성의 결핍으로 야기되는 또 다른 문제점은 아스팔트 고화체가 물과 접촉했을 때 팽윤이 일어나며 팽윤은 결국 침출율을 증가시킨다. 따라서 고화체의 부피변화는 가능한 한 낮아야 하며 많은 결정수를 갖는 알카리염을 형성하는 음이온은 불용성염으로 전환하여야 한다.
2. 형태 안정성의 결핍은 아스팔트 고화체의 침출 특성을 평가하는데 장애요인으로 지적된다. 침출수에 담겨진 고화체가 형태를 유지하지 못하여 침출 단면적이 변하기 때문이다. 아스팔트 고화체의 방사성폐기물에 대한 적용은 아스팔트의 높은 침출 저항성과 고화에 따른 부피 증가가 없는 장점 때문에 적용되고 있는데 폐 이온교환수지의 경우 원자력발전소에서는 이온교환수지가 5~10 wt% 함유된 시멘트 고화체를 제조하고 있는데 반하여, 원자력 연구소에는 40wt% 함유된 아스팔트 고화체를 제조하고 있다.
3. 방사능의 차폐와 형태 안정성을 유지하기 위하여 일본과 한국에서는 탄소강 드럼에 콘크리트가 보강된 고화체 용기를 사용하고 있다.
4. 아스팔트 고화체의 장점은 그대로 유지하면서 그 형태 안정성 및 기계

적 강도를 시멘트 고화체 만큼 향상시킴으로써 아스팔트 고화체의 팽윤방지 효과, 감용율 증대 및 처분시 공학적 보강을 필요로 하지 않는다. 따라서 고화체 자체의 장기적 형태 안정성을 유지할 수 있도록 가교제 역할을 하는 고화보조제로서 PE Film을 첨가하여 아스팔트 고화체의 형태안정성을 유지할 수 있다. 이 고화보조제 폴리에틸렌의 20wt% 첨가로 시멘트 고화체와 같은 압축강도를 나타낼 것으로 예상된다.

5. 본보고서를 토대로 방사성폐기물처리과정에서 발생하는 폐수지 및 소각재등의 아스팔트고화체에 대해 처분시 공학적 보강을 필요로 하지 않는 고화체 자체의 장기적 형태 안정성을 유지할 수 있는 제조공정 및 특성연구가 이루어 진다면 고화체 품질은 향후 다음과 같이 기대된다.

- 아스팔트 고화체의 장기적 안정성을 확보.
- 아스팔트 고화체의 공학적 보강이 불필요
- 아스팔트 고화의 감용율 증대.
- 유해 폐기물의 시멘트 고화 대응.
- 아스팔트 고화체의 침출특성 평가와 장기 침출을 예측
- 방사성폐기물의 아스팔트 고화시 제약 요건을 해소
 - o 팽윤 방지 효과
 - o 저장 면적 축소
 - o 감용율 증대
 - o 핵종의 장기침출 예측

참 고 문 헌

1. 한국 폐기물 학회, '폐기물 처리기술과 재활용', 동화기술, 1995
2. Davis, M.S., "The impact of LWR decontaminations on solidification, waste disposal and associated occupational exposure", NUREG/CR-3444, BNL- NUREG-51699, 1983
3. Hoberg, A. J., watson, C. D., and West, G. A., "An evaluation of asphalt and other materials for lining radiochemical waste storage basins", ORNL- 2508, P. 50, 1958
4. Dejonghe, P., "Fixation of low and intermediate active concentrates by inclusion in low melting inert media", TID-7613, P. 251-269
5. Rodier, J., Scheidhauer, J., and Malabra, F., "The conditioning of radioactive waste by bitumen", CEA-1992, P.23, 1961
6. Dejonghe, P., "Past, present and future outlook on the bituminization of radioactive wastes. History of the processing", ISBN 92-64-01509-4, P. 9-25, 1976
7. Hild, W., Kluger, W., and Krause, H., "Bituminization of radioactive wastes at the nuclear research center karlsruhe-Experience from plant operation and development work", ISBN 92-64-01509-4, P. 129-145, 1976
8. Eschrich, H., "The bitumination of radioactive waste solutions at Eurochemic" , ISBN 92-64-01509-4, P. 26-55, 1976
9. IAEA, "Bituminization Processes to Condition Radioactive Wastes", Tecnical Reports Series No. 352, 1993
10. Blokker, P. C., and Van Hoorn, H., "Durability of bitumen in theory and practies", Shell Bitumen Reprint, No. 14, 1959
11. Saal, R. N. J., Heukelom, W., and Blokker, P. C., "Physical constants

- of asphaltic bitumens" Journ. Institute of petroleum, Vol.26, No.195, P.29-39
12. Saal, R.N. J., Meinema, K., and Blokker, P. C. "Physical constants of asphaltic bitumens" Journ. Institute of petroleum, Vol. 26, No. 199, P. 246-255
 13. Dow, A. W. Proc. Am. Soc. Testing Materials, 3(1903) 345
 14. IAEA, "Bituminization of Radioactive Wastes", Technical Reports Series No. 116, 1970
 15. Eshrich, H., "Properties and Long-Term Behaviour of Bitumen and Radio-active Waste-Bitumen Mixtures", SKBF-KBS Teknisk Rap. 80-14, 1980
 16. Drent, W., "Effects of microorganisms on bituminous materials -A literature review-", ETR-275, P. 21, 1972
 17. Zobell, C. E.,and Molecke, M. A., "Survey of microbial degradation of asphalts with notes on relationship to nuclear waste management", SAND-78-1371, P. 37, 1978
 18. Jones. T. K, "Effects of bacteria and fungi on asphalt", Material protection, Dec., P. 39, 1965
 19. Harris, J. D., "Bacterial-environmental interactions in corrosion of pipelines", Ecological analysis corrosion 20, P. 335, 1964
 20. Van De Voorde, N., and Dejonghe, P., "Insolubilisation de concentrats radio-actifs par enrobage dans le bitume", Pratices in the Treatment of Low-and Intermediate-Level Radioactive Wastes, IAEA, Vienna 1966
 21. 한국원자력연구소, '일본원자력연구소 Oaria 연구소의 방사성 폐기물 처리 및 제염', KAERI/OR-76-88, 1988
 22. DOE, "Volume Reduction and Solidification (VRS) System for Low

Level Radwaste Treatment", DOE/ID/12636

23. Thomas, W. A., and John, B., "Desin, Fabrication, Testing, and Startup of a Mobile Volume Reduction and Solidification System", Waste Management 86, Vol. 3, P. 429-436, 1986
24. Hillmer, T.P., and Doyle, R. D., "Use of Volume Reduction and Solidification Services at Arizona Nuclear Power Projects Palo Verde Nuclear generation station", Waste Management 87, Vol. 3, P. 681-686, 1987
25. Oyen, L. C., and Tucker, R. F., "Advanced Low-Level Radwaste Treatment System", EPRI NP-1600, October, 1980
26. Doyle, R. D., and Rastberger, S. B., "Operating a Transportable Volume Reduction and Solidification System", ANS 53, P. 126-127, 1986
27. Burns, R. H., "Solidification of Low-and Intermediate-Level Wastes", Atomic Energy Review 9, P. 547-599, 1971
28. Lefilate, G., and Radi, L., "Solidification of liquid medium level residues by means of bitumen", CEA-R-4378, P. 90, 1973
29. Harfors, Co., "Properties of bitumenized radioactive waste from the plant of Barseback", Report prav 1.22, 1979
30. Zeger, J., Knotik, K., and Jakusch, H., "Sedimentation technique of waste bituminization and thermogravimetric characteristics of the final products", IAEA-SM-2071/55, 1976
31. Valkinen, M., Vuorinen, U. and Uotila, P., "The interaction of bituminized Ion-exchange resins with different leachants", Materials Ressearch Society Vol. 44, P. 977-984, 1985
32. Hild, W., Dettleux, E., *et al.*, "Development work on the homogeneous incorporation into bitumen of intermediate-level waste from the Eurochemic reprocessing plant",

Management of Low-andIntermediate-Level Radioactive Wastes, proc. symp. Aix-en-provence, P. 689-724, 1970

33. Zakharova, K.P., *et al.*, "On inflammability and explosiveness in bituminization", *At. Energ.*, V.44(3), P. 436-437, 1978
34. Zeger, J., Knotik, K., and Schopper, G., "Studies on the stability of bitumen salt mixtures 3. Mixtures of bitumen and simulated steel corrosion products", *SGAE-3006 Ch-244/78*, P. 21, 1978
35. Kluger, W., Koester, R., and Krause, H., "Survey on product properties of bituminized waste concentrates from reprocessing, nuclear installations and nuclear power plants", *KfK-2796*, P. 29, 1979
36. Hakan, S., "Review of hazards by incorporating radioactive waste in bitumen" *STUDSVIK/NW-82/330*, 1986
37. Cowgill, M. G., "A comparison of solidification media for the stabilization of Low-Level Radioactive Wastes", *BNL-52304*, 1991
38. Bowerman, B. S., *et al.*, "An evaluation of the stability tests recommended in the Branch Technical Position on waste forms and container materials", *NUREG/CR-3829*, 1984
39. 일본 동력로. 핵연료 개발사업단 동해사업소, "방사성 폐기물 고화체의 표준 침출법", *PNC SN-842-84-01*, 1984
40. Anonym, "Disposal of Intermediate-Level Radioactive Wastes" *ORNL-3627*, P. 108-110, 1964
41. Malasek, E., and Kulichenko, V. V., "Review of the research and development work and experience in the field of bituminization in the member countries of the council for mutual economic assistance", *ISBN-92-64-01509-4*, P. 185-197, 1976
42. Godbee, H. W., and Clark, W. E., "Incorporation of Intermediate-Level Waste in asphalt", *ORNL-TM-1081*, P. 100-103,

1965

43. Godbee, H. W., and Clark, W.E., "Disposal of low-and intermediate-level waste in asphalt", ORNL-TM-830, P. 60-66, 1964
44. Krause, H., "Annual report 1971", KfK-1830, P. 120, 1973
45. Rodier, J., Lefillatre, G., Radi, L., and Cudel, Y., "Coating of evaporation concentrates with bitumen", CEA-R-3632, P. 114, 1968
46. Baehr, W., *et al.*, "Recent experiments on the treatment of Medium-Level Wastes and spent solvent and on fixation into bitument", IAEA-SM-207/81, ISBN 92-0-020376-0, V. 2, P. 133-141, 1976
47. Anonym, "Intermediate-Level Radioactive Waste", ORNL-4422, P. 144-150, 1969
48. Godbee, H. W., *et al.*, "Laboratory development of a process for the incorporation of radioactive waste solutions and slurries in emulsified asphalt", ORNL -4003, P. 44, 1967
49. Godbee, H. W., Goods, J. H., and Blanoo, R. E., "Development of a process for incorporation of radioactive waste solutions and slurries in emulsified asphalt", Environment Science Technology, V.2, P. 1034-1049, 1968
50. Lefillatre, G., and Leconnetable, J., "Bituminization of radioactive waste: safety problems and appropriation fields", European Nuclear Conf., April P. 21-25, 1975
51. Fischer, W., and Korner, W., "On the bituminization of aqueous radioactive waste concentrates", Isotopenpraxis, V.7, P. 376-382, 1969
52. Bonnevie-svendsen, M., *et al.*, "Studies on the incorporation of spent Ion Exchange Resins from nuclear power plants into bitumen and

cement", IAEA-SM-207/78

53. Doyle, R. D., "Asphalt encapsulation of radioactive waste", Waste Management 79, 1979
54. Buckley, L. P. and speranzini, R. A., "Evaluation of matrices for immobilizing Ion-exchange resins", AECL-6971, 1980
55. Buckley, L. P. and speranzini, R. A., "Treatment of spent Ion-exchange resins for disposal" AECL-7411, 1981
56. Arnold, G., Colombo, P., and Fuhrmann, M., "Modified sulfur cement solidification of Low-Level Wastes", BNL-51923, 1985
57. IAEA, "Immobilization of low and Intermediate Level Radioactive Wastes with Polymers", Technical Reports Series No. 289, 1988
58. IAEA, "Treatment of Low-and Intermediate-Level Radioactive Waste Concentrates", Technical Report Series No. 254, 1985
59. Fuhrmann, M., Pietrzak, R. F. and Franz, E. M., "Optimization of the factors that accelerate leaching", BNL-52204, 1989

서 지 정 보 양 식

수행기관 보고서번호	위탁기관보고서번호	표준보고서 번호	INIS 주제 코드
KAERI / AR-486/98			
제목 / 부제	방사성폐기물 아스팔트고화체 기술현황		
연구책임자/부서명 (AR,TR일 경우 주저자)	김태국 (방사성폐기물 처리시설운영)		
연구자 / 부서명	손종식(RWTF) 김길정(RWTF) 이강무(RWTF), 정인하(DUPIC)		
발행지	대전	발행기관	한국원자력연구소
페이지	130 P.	도표	유 (V), 무 () 크기
참고사항			
비밀여부	공개 (V), 대외비 (), 급 비밀	보고서 종류	기술현황분석 보고서
연구 위탁기관		계약 번호	
초 록	<p>방사성폐기물 처리에 사용되는 아스팔트의 물리,화학적성질 및 아스팔트이용과 아스팔트고화체의 특성, 침출저항, 열 및 기계적안정성 등을 문헌을 통하여 평가하고 고화처리기술과 고화공정을 조사하였다. 또한 고화체내에 폐기물의 함량을 극대화 하면서 침출을 및 열적저항, 압축강도를 증대시킬 목적으로 농업용 PE Film을 아스팔트고화체에 첨가하여 고화체 내에서의 폐기물의 침강방지, 강도강화 및 수분과 접촉시 고화체의 팽윤 등을 최저로 하는 안정된 고화체성분을 규명한 고화체 제조방법을 제시하고 점도, 팽윤, 압축 강도 및 침출특성에 관한 연구방향을 제시하였다. 따라서 이 문헌연구를 토대로 아스팔트 고화체의 최대 결점인 형태 안정성 및 기계적 강도의 결핍을 보강하기 위한 고화 보조제를 이용하여 처리한다면 처분장 매립지의 환경속에서 장기 안정성을 지니는 아스팔트 고화체를 제조할 수 있을 것으로 판단된다.</p>		
주제명키워드	<p style="text-align: center;">방사성폐액처리, 중저준위방사성폐액, 아스팔트, 아스팔트고화공정, 폐기물고화공정, 침출율.</p>		

BIBLIOGRAPHIC INFORMATION SHEET					
Performing Org. Report No.	Sponsoring Org. Report No.	Standard Report No.	INIS Subject Code		
KAERI / AR-486/98					
Title/Subtitle					
State of the Art Report on Bituminized Waste Forms of Radioactive Wastes					
Project Manager/Dept. (or Main Author)	Taekook Kim (Rad Waste Treatment Facility Dep.)				
Researcher/Dept.					
Jongsik Shon(RWTF), Kiljeong Kim(RWTF), Kangmoo Lee.(RWTF), Inha Jung(DUPIC).					
Pub. Place	Tae jon	Pub. Org.	KAERI	Pub. Date	1998.3
Page	130 P.	Ill. and Tab.	Yes (v), No ()	Size	26 cm.
Note					
Classified	Open (v), Outside (),	Class	Report. Type	State of the Art	
Sponsoring Org.			Contract No.		
Abstract					
<p>In this report, research and development results on the bituminization of radioactive wastes are closely reviewed, especially those regarding waste treatment technologies, waste solidifying procedures and the characteristics of asphalt and solidified forms.</p> <p>A new concept of the bituminization method is suggested in this report which can improve the characteristics of solidified forms. Stable solid forms with high leach resistance, high thermal resistance and good compression strength were produced by the suggested bituminization method, in which spent polyethylene from agricultural farms was added.</p> <p>This report can help further research and development of improved bituminized forms of radioactive wastes that will maintain long term stabilities in disposal sites.</p>					
Subject Keywords					
Treatment of radioactive liquid wastes, Low and intermediate level radioactive waste, Asphalt, Bituminization process, Waste solidifying process, leaching rate.					