

## 폐식용유를 이용한 아스팔트 실란트

김 석 준

군산대 재료·화학공학부

(2004년 2월 2일, 2004년 3월 21일 수정 및 채택)

### Asphalt Sealant Containing the Waste Edible Oil

Seogjun Kim

School of Material Science & Chemical Engineering, Kunsan National University,  
San #68, Miryon-dong, Kunsan, Chonbuk 573-701, Korea

(Received February 2, 2004, Revised and Accepted March 2, 2004)

요약: 본 연구는 폐식용유를 이용하여 아스팔트계 봉합재(sealant)를 제조하는 것이다. 아스팔트계 봉합재는 포장도로의 균열 봉합재 및 교량 조인트용 봉합재로 사용되는 재료이다. 아스팔트(AP-5), 열가소성 고무(SBS triblock copolymer), 접착제(tackifier) 및 안정제를 기본 성분으로 하여 연화제로 방향족계 또는 파라핀계 공정유, DOP(dioctyl phthalate), 벙커 C유 또는 폐식용유와 혼합하여 침입도, 연화점, 신도 및 인장 접착 신율(상온 및 저온)을 측정하였다. 연화제의 종류 및 함량에 따라 봉합재의 물성이 크게 변화하였다. 폐식용유 또는 DOP를 사용한 경우가 저온 인장 접착 특성이 가장 우수하였다. 폐식용유 함량이 증가함에 따라 아스팔트 봉합재의 침입도는 및 인장 접착 신율은 증가하였고 증량제로 탈크를 첨가할 경우 함량에 비례하여 침입도 및 저온 인장 신율은 감소하였다. 배합비를 최적화하여 침입도가 낮으면서도 저온 인장 접착성이 우수한 아스팔트 봉합재를 제조할 수 있었다.

**ABSTRACT** : This work is about the development of asphalt sealant using the waste edible oil. Asphalt sealant has been used for crack filler and bridge deck joint sealer. Several plasticizers such as aromatic or paraffin process oils, DOP, Bunker C fuel oil, and waste edible oil were compounded with the basic components such as asphalt(AP-5), a thermoplastic elastomer(SBS triblock copolymer), a tackifying agent(petroleum resin), and stabilizers. Penetration, softening point, ductility, and elongation by tensile adhesion of those asphalt sealant compounds were measured. Their properties were changed largely depending on both the type and content of plasticizers. Waste edible oil and DOP were the best plasticizers for the low temperature tensile adhesion characteristics. Penetration and elongation by tensile adhesion of asphalt sealant compounds increased with the increase of waste edible oil content and decreased with the increase of talc content. The manufacture of asphalt sealant with low penetration and excellent low temperature tensile adhesion was possible by the recipe optimization.

*Keywords* : asphalt sealant, crack filler, joint sealant, waste edible oil, SBS

† 대표저자(e-mail : sjkim@kunsan.ac.kr)

## I. 서 론

아스팔트 봉합재(asphalt sealant)<sup>1,2</sup>는 포장도로의 균열 봉합재(crack sealant)에 주로 사용되고 있고 골재와 혼합하여 교량 조인트의 보수 및 신설 시에 신축이음용 봉합재(joint sealant)로 사용되고 있다. 미국, 유럽 등에서는 포장도로, 주차장 및 교량 조인트 등의 유지 보수에 많은 양의 아스팔트 봉합재를 사용하고 있으나 국내에서는 아직 사용량이 많지는 않지만 점차 증가 추세에 있다. 봉합재는 사용 지역의 기후에 적합한 물성을 갖는 것이 중요하고 사계절이 뚜렷한 한국의 기후에 적합한 봉합재를 연구 개발하는 것이 국내 적용을 위한 중요한 선결 과제이다.

아스팔트 봉합재는 도로 포장용 아스팔트를 개선시킨 것으로 아스팔트에 고분자를 첨가한 고분자 변성 아스팔트(polymer modified asphalt, PMA)에 접착성 향상제(adhesion promoter) 또는 점착제(tackifying agent)를 첨가하여 접착성을 향상시킨 것이다. 초기의 PMA는 천연고무 또는 스티렌-부타디엔 고무(SBR)를 아스팔트에 첨가한 고무화 아스팔트를 사용하거나 페타이어 고무 분말(ground tire rubber, GTR or crumb rubber, CR)을 첨가한 고무 아스팔트(CRM) 등의 단순한 조성물로 도로 포장용 바인더 및 봉합재로 사용되었다.<sup>2,5</sup> 현재, 미국에서는 페타이어의 재활용을 촉진하기 위해 페타이어 고무분말을 아스팔트 포장 재료에 일정량 이상 사용하는 것을 의무화 하고 있어<sup>5</sup> 아스팔트 봉합재의 경우에도 페타이어 고무분말을 사용하는 것이 일반적인 경향이다.

Shell사는 자체 개발한 스티렌-부타디엔 블록 공중합체(SB diblock copolymer) 또는 스티렌-부타디엔-스티렌 삼블록 공중합체(SBS triblock copolymer)를 페타이어 고무분말과 함께 아스팔트에 적용함으로써 물성이 현저히 개선된 PMA<sup>6-8</sup>를 제조하였으며 이는 주로 추운 지역의 포장용 바인더로 사용되었다. 최근에는 LDPE,<sup>9,10</sup> HDPE,<sup>11</sup> PP,<sup>12</sup> polyolefins,<sup>13-15</sup> EVA,<sup>16,17</sup> PS<sup>18</sup> 등의 페플라스틱을 이용하여 아스팔트를 변성시켜 도로 포장 또는 봉합재로 사용하고 있다. 그러나, SBS, LDPE, HDPE, EVA

등의 고분자가 첨가된 아스팔트의 경우 아스콘의 강도, 탄성 및 저온 취성이 약간 개선되긴 하나, 이를 기온 변화가 심한 지역의 도로 포장용 바인더 또는 봉합재로 사용하기 위해서는 저온에서의 물성 개선이 요구된다. 한편, 고분자 변성 아스팔트를 봉합재로 사용하기 위해서는 가공성, 접착성 등을 향상시키기 위해 연화제, 충전제 및 점착제를 첨가하는 것이 일반적이다.<sup>1,19</sup>

최근 연구<sup>20</sup>에서는 아스팔트의 화학 성분이 저온 물성에 중요한 역할을 하고 포화탄화수소(saturates) 및 방향족(aromatics) 등의 저분자량 성분들이 많을수록 파괴 온도(fracture temperature)가 감소하는 것으로 보고 되었다. 실제로 아스팔트는 포화탄화수소, 방향족, 레진(resins) 및 아스팔텐(asphaltenes) 등의 복잡한 성분들로 이루어진 것으로 원료인 원유의 종류 및 열분해 정도에 따라 화학적 성분이 매우 다양하게 나타난다.

도로 포장 재료 및 봉합재에 주로 사용되는 고분자 변성 아스팔트의 경우 고분자의 함량을 증가시키는 것이 물성 개선에 도움이 되나 고분자-아스팔트간의 상용성이 문제가 되고 있으며<sup>21,22</sup> 고분자 개질제(예를 들면, SBS)의 가격이 비싸 최종 제품 가격이 상승되는 문제가 있다. 아스팔트와 SBS 삼블록 공중합체의 블렌드에서는 SBS가 20%(부피분율) 함량일 때 200℃의 상부임계온도(upper critical solution temperature, UCST)를 갖는 형태의 부분상용성을 보였다.<sup>21</sup> 고분자와 아스팔트간의 상용성을 향상시키기 위한 방법으로 재활용 폴리에틸렌을 사용하는 경우에는 페타이어 열분해 오일을 사용하여 상용성을 향상시킨 바<sup>22</sup> 있으며 SBS 블록 공중합체의 경우에는 황을 소량(SBS 함량의 5 중량%) 사용하여 상용성과 저장성을 향상시킨 결과<sup>23</sup>가 보고 되었다.

본 연구에서는 아스팔트 봉합재의 저온 특성을 향상시키기 위해 SBS 삼블록 공중합체의 첨가량을 15~20 wt%로 크게 증가시키고 폐식용유를 연화제 및 상용화제로 사용하여 여러 물성을 측정하였으며 기존에 연화제로 사용되는 방향족계 또는 파라핀계 공정유, DOP, 벙커 C유 등을 사용한 것들과의 물성을 비교하였다. 또한, 폐식용유의 함량에

다른 아스팔트 봉합재의 물성 변화를 알아보았으며 증량제로 탈크를 첨가하여 침입도, 연화점 및 흐름성의 개선 정도와 상온 및 저온에서의 인장 접착 물성을 살펴보았다.

## II. 재료 및 실험

### 1. 재료

아스팔트는 LG 칼텍스 정유에서 생산하는 AP-5를 사용하였으며 SBS는 금호석유화학에서 생산하는 KTR-101P를 사용하였다. 참고로 AP-5의 평균적인 물성은 침입도가 71 dmm(1 dmm= 0.1 mm)이고 연화점이 47.5℃이며 신도는 150cm 이상이다. 폐식용유는 분식집에서 튀김용으로 사용하고 폐기한 것을 입수한 후 유리섬유로 걸러 이물질 제거한

것을 사용하였다. 연화제로 방향족계 공정유인 A-3(미창 석유) 및 파라핀계 공정유인 P-3(미창 석유), DOP(dioctylphthalate, Junsei Chemical Co. Ltd., GR급, 일본) 및 벵커 C유(LG 칼텍스 정유)는 입수한 그대로 사용하였다. 안정제로는 1차 및 2차 산화방지제의 1:2 블렌드인 Songnox 21B(송원산업)를 모든 봉합재에 0.5중량% 첨가하였으며 충전제로는 탈크(KC-325)를 한중교역에서 구입한 그대로 건조하지 않고 사용하였다. 접착제(tackifying agent)로는 코오롱 유화에서 생산하고 있는 DCPD(dicyclopentadiene)계 석유수지인 상품명 Sukorez SU-120을 구입하여 사용하였다.

### 2. 실험 방법

아스팔트 봉합제 배합물(A1~A15)은 아스팔트

**Table 1. Recipes and Properties of Asphalt Sealant Compounds Containing Several Plasticizers**

	A1	A2	A3	A4	A5
Asphalt(AP-5) (phr)	100	100	100	100	100
SBS(KTR-101P) (phr)	58	58	58	58	58
Petroleum resin (Sukorez SU-120) (phr)	87	87	87	87	87
Oil	P-3	A-3	BC유	DOP	waste edible oil
Oil content(phr)	43.5	43.5	43.5	43.5	43.5
Penetration (0.1mm) (25℃, 150g, 5s)	85	56	47	95	99
Softening Point(℃)	119	108	119	89	101
Ductility(cm)	fail	88	91	57	62
Flow(mm) (60℃, 5hrs)	1	0	0	4	2
Tensile Adhesion-Elongation at 25℃ (%)	140	740	712	520	788
Tensile Adhesion-Elongation at -29℃ (%)	88	128	104	344	300

**Table 2. Recipes and Properties of Asphalt Sealant Compounds Containing the Waste Edible Oil**

	A6	A7	A8	A9
Asphalt(AP-5) (phr)	100	100	100	100
SBS(KTR-101P) (phr)	44	47	51	55
Petroleum resin (Sukorez SU-120) (phr)	58	63	68	74
Talc(KCN-325) (phr)	58	63	68	74
Waste edible oil (phr)	30	40	50	65
Penetration (0.1mm) (25℃, 150g, 5s)	72	125	140	197
Softening Point(℃)	94	88	84	74
Ductility(cm)	33	40	44	37
Flow(mm) (60℃, 5hrs)	2	6	35	87
Tensile Adhesion-Elongation at 25℃ (%)	140	524	688	748
Tensile Adhesion-Elongation at -29℃ (%)	100	228	460	536

**Table 3. Recipes and Properties of Asphalt Sealant Compounds Containing the Waste Edible Oil and Talc Filler**

	A10	A11	A12	A13	A14	A15
Asphalt(AP-5) (phr)	100	100	100	100	100	100
SBS(KTR-101P) (phr)	55	55	55	55	55	55
Petroleum resin (Sukorez SU-120) (phr)	85	85	85	85	85	85
Talc(KCN-325) (phr)	0	30	70	120	180	230
Waste edible oil (phr)	50	50	50	50	50	50
Penetration (0.1mm) (25°C, 150g, 5s)	135	119	105	89	62	55
Softening Point(°C)	93	94	95	97	99	102
Ductility(cm)	54	51	45	33	31	17
Flow(mm) (60°C, 5hrs)	9	10	8	6	3	2
Tensile Adhesion- Elongation at 25°C (%)	760	692	620	608	300	244
Tensile Adhesion- Elongation at -29°C (%)	512	408	384	356	220	120

(LG 칼텍스 정유, AP-5)를 중량기준 100으로 하여 SBS, 연화제, Sukorez SU-120(코오롱 유화) 및 탈크 등을 Table 1~Table 3에 주어진 phr로 무게를 달아 온도조절이 가능한 임펠러 교반기(Lab. Stirrer, TOPS사)를 이용 180°C에서 300 rpm으로 5시간 교반하여 제조하였다.

Table 1(A1~A5)은 폐식용유를 포함한 각종 연화제들의 성능을 비교하기 위한 실험에 대한 것이고 Table 2(A6~A9)는 폐식용유 함량에 따른 아스팔트 봉합재의 물성 변화를 알아보기 위한 것이며 Table 3은 탈크 함량에 따른 물성 변화를 알아보기 위한 것이다.

### 3. 물성 시험

#### 3.1 콘 침입도(cone penetration)

콘 침입도는 국내의 아스팔트 품질 규정인 KS M 2201에 의해 아스팔트 등급 분류에 사용되는 것으로 본 연구에서는 KS M 2252(역청재료의 침입도 시험 방법)의 방법에 따라 침입도 시험기(Penetrometer, 모델명 K95500, Koehler Instrument Co., USA)를 이용 25°C 상온, 하중 150 g에서 5초간 바늘의 관입량을 0.1 mm(=dmm) 단위로 측정하여 봉합재의 경도를 나타내었다. 이 시험 방법은 미국 표준인 ASTM D 5329의 콘 침입도 시험 방법과 동일하다.

#### 3.2 연화점(softening point)

아스팔트계 봉합재의 내열성 정도를 판별하기 위한 시험 방법으로서 국내 도로 포장용 아스팔트 품질 규정(KS M 2201 및 KS M 2208)에는 적용되지 않는다. 시험은 배합된 아스팔트계 재료를 가열하여 연화점 시험 몰드에 부어 공랭하여 시험편을 제조한 다음 철제 구를 올린 후 글리세롤 용액 내에 담가 가열하면서 시료가 연화되어 철제 구가 규정된 길이(24.5 mm) 이하로 처졌을 때의 온도를 측정하는 KS M 2250(환구법)의 시험 방법에 따라 동일 시료에 대해 세 개의 시험편의 연화점을 측정하여 평균값을 구하였다.

#### 3.3 신도(ductility)

신도는 도로 포장용 아스팔트 및 봉합재의 유연성(또는 가요성)을 나타내는 수치로서 KS M 2254(역청재료의 신도 시험방법)에 의해 신도 몰드에 배합 제조된 아스팔트계 재료를 가열하여 부어서 냉각하여 균한 세 개의 시험편을 신도시험기(Ductility Testing Machine, Model DA-725, 동아시아시험기)를 이용하여 25°C의 물속에서 5 cm/min의 속도로 인장하여 파단시의 늘어난 길이를 cm 단위로 측정하였다.

#### 3.4 흐름성(flowability)

흐름성 측정은 ASTM D 5329에 소개된 방법에 따라 주석판위에 40 mm(1.57 inch)의 폭과 60 mm(2.36 inch)의 길이 및 3.2 mm(0.125 inch)의 깊이를 갖는 형틀을 만들고 바닥면을 제외한 안쪽

면 모두에 이형제(50% talc + 35% glycerine + 15% 물)를 바른 다음 뜨거운 아스팔트 봉합재를 붓고 4 시간 동안 상온에 방치하여 만들었다. 시료가 부착된 주석판은 냉각 후 바로 수평에서 75±1° 기울인 각도로 강제 환풍 건조기 안에 세운 다음 60℃에서 5시간 동안 노출시킨 후 참조선(시험전 부착된 시료의 아랫부분)에서 흘러내린 거리를 캘리퍼스로 mm 단위까지 측정하였다.

3.5 인장 접착 시험(tensile adhesion)

인장 접착시험용 시편은 ASTM D 5329의 인장 접착 시험 방법 또는 KS F 2368(콘크리트 포장용 신축이음 채움재 시험 방법)의 접착력 및 인장 접착 시험 방법을 약간 변경시켜 만들었다. 두 개의 콘크리트 블록(50 X 75 X 100 mm)을 50 X 75 mm 면이 서로 마주보게 하여 25 mm(1 inch) 간격이 되도록 양쪽에 놓고 두 블록 사이에 이형지를 설치하여 빈 공간을 만든 다음 이 공간에 뜨거운 아스팔트 봉합재 배합물을 부어 상온에서 24시간 이상 냉각하여 만들었다.

동일한 조성에서 각각 세 개의 시편을 만든 후 적당한 지그를 이용하여 신도시험기(Ductility Testing Machine, Model DA-725, 동아시험기)에 고정한다. 다음 ASTM D 5329의 규정에 따라 12.7 ± 2.54 mm/min(0.5 ± 0.1 in./min) 속도로 시험편이 파괴될 때까지 인장시험을 수행하여 인장 신율(%)을 측정하였다. 시험 온도는 상온 및 -29℃로 달리하여 측정하였고 각 시료의 인장 신율은 각 온도에 대해서 시험편의 측정값들을 평균하여 계산한 것이다. 저온(-29℃) 실험은 에틸렌글리콜 부동액을 제조한 다음 드라이아이스로 냉각하여 시험편을 부동액에 담근 상태에서 수행하였다.

Ⅲ. 결과 및 고찰

본 실험의 목적은 저온에서도 신축성이 우수해 아스팔트 포장 도로의 크랙 보수 및 신축이음용으로 가장 적합한 아스팔트 봉합재를 제조하는 것이다. 이러한 봉합재를 개발하기 위해서는 침입도가 낮으면서도 저온에서 취성이 없고 접착력이 강한 물성을 갖도록 하는 최적의 연화제를 찾은 다음

배합비를 최적화하는 연구가 수행되어야 한다. 아스팔트 봉합재의 물성에 대한 ASTM 규격은 포장 도로의 크랙 보수용 규격(ASTM D 5078)과 신축이음 봉합재(joint sealant)에 대한 규격 두 종류(ASTM D 1190 및 D 3405)를 Table 4에 정리하였다. 이밖에도 ASTM D 3406(Standard Specification for Joint Sealant, Hot-Applied, Elastomeric-Type, for Portland Cement Concrete Pavements)이 신축이음용 봉합재에 대해 규정하고 있으나 흐름성에 대한 규정이 70℃에서 72시간 동안 흐름치가 0 mm로 이러한 규정을 통과할 수 있는 아스팔트 봉합재는 아직까지는 만들 수 없는 것으로 판단되어 Table 4에는 나타내지 않았다. 국내 규격에는 KS F 2368(콘크리트 포장용 신축이음 채움재 시험 방법)이 있으나 시험 방법에만 한정된 것으로 콘 관입시험, 흐름 시험, 접착력 시험, 원상회복 시험, 축진 내후성 시험, 인장 접착 시험 및 용해도 시험에 대해서만 설명되어 있다.

아스팔트, SBS 삼블록 공중합체 및 점착제를 기본 성분으로 하고 여러 종류의 연화제를 첨가한 배합물들에 대한 조성과 물성 결과를 Table 1에 정리하였다. 연화제의 종류 및 함량에 따라 봉합재의 물성이 크게 변할 것으로 예상되므로 우선 연화제의 함량을 동일하게 하면 연화제의 종류에 따른 봉합재의 물성 변화를 파악할 수가 있다. 연화점은 P-3 공정유와 BC유를 첨가한 봉합재에서 119℃로 가장 높게 나타났으나 흐름성을 살펴보면 A-3와 BC유를 사용한 것들이 0 mm로 가장 우수하였다. 폐식용유를 사용한 것이 DOP를 첨가한 것보다 연화점은 높으나 침입도는 크게 나타났다. 봉합재의 물성에서 환구법에 의한 연화점 결과와 흐름성 값들의 순서는 서로 일치하지 않으나 일반적으로 연화점이 낮은 것들이 흐름성 값들이 크게 나타나 내열성이 나쁜 경향은 확인할 수 있었다. 또한, 봉합재의 내열성 또는 감온성을 평가하기 위해서는 실제 주어진 온도에서 증력에 의해 흘러내린 길이를 측정하는 흐름성 시험 결과가 철제 구가 봉합재를 일정 길이로 처지게 하는 온도인 환구법에 의해 측정된 연화점보다 직접적인 물성치로 생각된다. 일반적으로 환구법에 의한 연화점은 바퀴자

Table 4. American Standard Specifications for Hot-Applied Crack Filler and Joint Sealant

Properties	ASTM D 5078-95	ASTM D 1190-97	ASTM D 3405-96
Title	Crack Filler, Hot-Applied, for Asphalt Concrete and Portland Cement Concrete Pavements	Concrete Joint Sealer, Hot-Applied Elastic Type	Joint Sealant, Hot-Applied, for Concrete and Asphalt Pavements
Safe Heating Temperature	20°F(11°C) higher than minimum application temperature	Pour point : 20°F(11°C) lower than safe heating temperature	set forth by the manufacturer, shown in all containers, provided to the testing agency
Softening Point (°C)	150°F(65.5°C), minimum	-	-
Cone Penetration (25°C, 150g, 5s)	not exceed 70	not exceed 90	not exceed 90
Cone Penetration (4°C, 200g, 60s)	15, minimum	-	-
Flow	-	not exceed 5 mm (after 5 h at 60°C)	not exceed 3 mm (after 5 h at 60°C)
Bond	-	at -17.8°C, 5 cycles of 50% extension(3.2 mm/h) No crack, separation over 6.4 mm deep	at -29°C, 3 cycles of 50% extension(3.2 mm/h) No crack, separation over 6.4 mm deep
Resilience	at 25°C, 30%, minimum	-	60%, minimum

\* Test method : ASTM D 5329.

국 형성(rutting)에 대한 저항성 또는 여름철에 심하게 나타나는 소성변형에 대한 저항성을 나타낸다. 따라서, 봉합재의 내열성을 판단하기 위해서는 연화점과 흐름성을 모두 고려하여 두 물성이 모두 우수한 경우가 내열성 또는 감온성이 높은 것으로 판단해야 할 것으로 사료된다.

공정유로 사용되는 오일에는 파라핀계, 방향족계 및 나프텐계가 있는데 파라핀계 오일인 P-3와 방향족계 오일인 A-3의 경우 봉합재의 물성에는 A-3를 첨가한 것이 상대적으로 침입도가 작고 인장점착 신율이 크게 나타났으나 연화점은 P-3의 경우가 높았다. 파라핀계 및 나프텐계 오일은 연화점을 높이거나 점착제(DCDP계 석유 수지)의 점착성을 무력화시키므로 신도 측정이 불가능하고 상온 및 저온에서의 인장 점착 신율이 매우 낮고 취성이 매우 크게 나타났다. 상온에서의 점착성을 나타내는 상온에서의 인장 점착 신율은 A-3, BC유 및 폐식용유에서 매우 높게 나타났으나 저온에서의 점착성을 나타내는 저온(-29°C)에서의 인장 점착 신율은 DOP와 폐식용유를 사용한 봉합재들에서만 높게 나타났다. 따라서, 저온에서의 점착 특성이

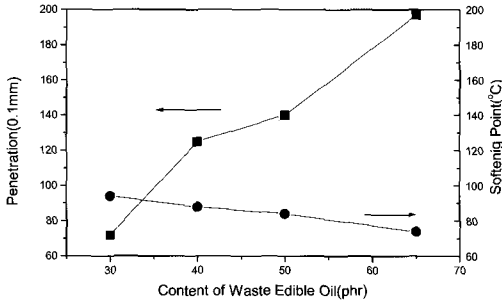
우수한 봉합재를 얻기 위해서는 DOP 또는 폐식용유를 사용하는 것이 바람직하나 DOP의 경우는 환경호르몬 및 발암물질로 알려져<sup>24</sup> 최근 사용이 감소하는 추세에 있으므로 폐식용유를 사용하는 것이 보다 환경 친화적이며 경제적으로도 유리하다. 저온 인장 점착 신율이 크게 나타난 폐식용유의 경우 -30°C의 냉동실에서 24시간을 방치해도 부분적으로 얼지 않으나 A-3 및 벵커C유는 동일한 온도에서 유동성이 없어지는 관찰 결과 폐식용유의 유동점(pour point)이 오일들 중에서 가장 낮은 것을 알 수 있고 DOP의 유동점은 문헌<sup>25</sup>에 -46°C로 주어진 바에 따르면 연화제의 유동점이 낮을수록 봉합재의 저온 물성이 우수한 것으로 판단된다. 본 연구에서의 모든 아스팔트 봉합재 배합물은 인장 점착 시험시 콘크리트 봉합재의 한쪽 점착면에서 떨어지는 점착 파괴(adhesive failure) 현상을 보였다. 이는 상온 및 저온에서 모두 봉합재와 콘크리트 사이의 점착강도가 봉합재 자체의 변형시 주어진 인장강도 보다 약하기 때문에 나타나는 현상이다. 또한, 저온에서는 상온에서보다 봉합재의 점착강도 및 인장강도가 모두 증가하나 SBS가 아스팔

트에 잘 섞일수록 온도 감소에 따른 인장탄성을 증가량이 작을 것으로 생각되며 결국 동일한 접착 강도에서 인장탄성률이 작을수록 즉, 유연성이 클수록 접착강도와 같은 인장강도까지 도달하는 길이인 인장 접착 신율이 증가할 것으로 생각된다. 따라서, 아스팔트와 SBS 사이의 상용성을 증가시키고 자체 유동점이 낮은 연화제가 저온에서의 인장 접착 신율을 최대화시키고 저온 취성을 감소시킬 것으로 생각된다. 또한, DOP의 경우는 상용성 증가와 가소화효율이 커서 저온 인장 접착 신율이 가장 크지만 연화점이 89°C로 너무 낮은 단점을 보이나 동일한 연화제 함량에서 폐식용유의 경우는 저온 특성이 우수하면서도 연화점 감소폭이 작아 사용된 연화제중에서 가장 적합한 것으로 생각된다.

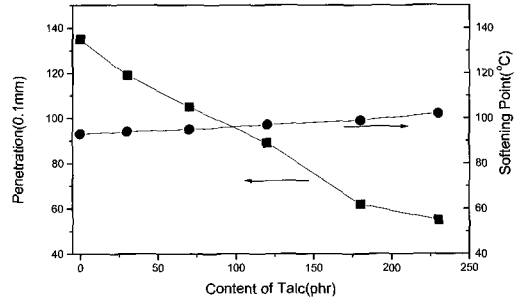
본 연구에서 봉합재의 물성을 향상시키기 위해 가장 중요한 것은 아스팔트와 SBS 삼블록 공중합체와의 상용성이다. 일반적으로 아스팔트에 고분자를 첨가하는 경우 연화점이 상승하고 침입도는 증가하여 고온 물성(내열성 및 소성변형에 대한 저항성)을 향상시키는 결과를 가져오나 점도가 증가하여 골재와의 혼합 성능이 나빠지고 고분자가 아스팔트의 오일 성분을 흡수하여 단단한 아스팔트를 만들어 저온 균열성이 나빠지는 즉, Frass 온도가 증가하는 결과를 보이는 것으로 알려져 있다.<sup>22</sup> 특히, 본 연구에서는 고분자 변성 아스팔트(PMA)에서 사용되는 일반적인 SBS 함량인 3~7 wt%보다 매우 많은 15~20 wt%를 포함하고 있기 때문에 아스팔트와의 상용성이 매우 중요하고 연화제가 상용성을 높이는 작용을 하는 것이 저온 물성면에서는 매우 바람직하다고 생각된다. 앞선 연구에서도 SBS 함량이 증가할수록 전체적인 네트워크 형성에 따라 점도가 증가하고 연화점이 상승하는 결과를 보였다.<sup>23</sup> 아스팔트와 SBS의 블렌드는 아스팔트 종류에 따라 약간의 차이를 보이나 SBS 함량이 65%(부피분율) 함량일 때까지는 고온에서는 섞이고 저온에서는 상분리되는 상부임계온도(UCST)를 갖는 형태의 부분상용성을 보이므로<sup>21</sup> 상온에서는 두개 이상의 상을 갖는 것으로 생각된다. 따라서, SBS를 아스팔트에 높은 함량으로 첨가하는 경우

혼합 방법이 비효율적이고 혼합 시간이 충분히 길지 않은 경우에는 아스팔트가 SBS에 일부 스며든 SBS가 많이 포함된 상(SBS-rich phase)과 SBS가 아스팔트에 일부 용해된 아스팔트가 많은 상(asphalt-rich phase)외에도 거의 순수한 SBS 입자들이 불균일하게 존재할 가능성이 매우 크다. 따라서, 아스팔트와 SBS의 상용성을 높이는 방법이 요구되고 이는 혼합 조건을 고전단혼합(high-shear mixing)에서 단순한 임펠러 혼합으로 대체할 수 있게 하며 혼합 가공시간을 줄이고 형태학적인 불균일성에 따른 물성의 편차를 크게 줄일 것으로 판단된다. 또한, 상용성 증가에 따른 상분리된 입자들의 형태학적 크기의 감소가 아스팔트와 고분자간 블렌드의 최종 물성을 상승시킬 것으로 생각된다. 앞선 연구에서는 황을 첨가하는 방법으로 입자의 크기를 크게 감소시키고 고온 안정성을 높이는 결과를 얻었고 이는 황에 의한 아스팔트와 SBS간의 상용성 증가에 기인한 것으로 보고되었다.<sup>23</sup> 이밖에도 LDPE와 PP를 아스팔트에 섞는 연구에서 톨유 피치(tall oil pitch)를 분산제로 사용하여 연화점의 급격한 증가를 가져오는 고분자 함량을 증가시키는 연구 결과<sup>14</sup>와 페타이어의 열분해 오일 잔류물을 이용하여 페폴리에틸렌과 아스팔트의 상용성을 증가시켜 저온물성을 개선시키는 결과<sup>22</sup>가 보고된 바 있다. 따라서, 연화점의 감소 및 저온 인장 접착성의 증가는 해당 연화제가 아스팔트와 SBS의 상용성을 증가시키는 것에 기인하는 것으로 판단할 수 있다.

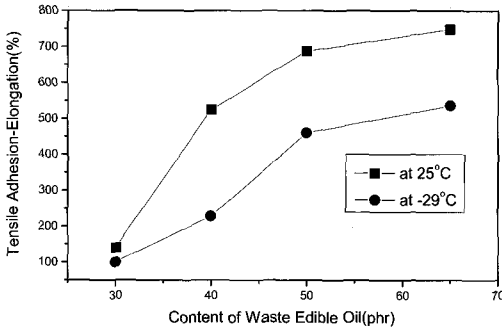
일반적으로 봉합재의 물성은 연화제의 함량이 증가할수록 침입도는 증가하고 연화점은 감소하여 내열성은 나빠지나 신도 및 인장 접착 신율은 인장강도 감소에 의해 크게 증가할 것으로 예측할 수 있다. 다만, 함량에 따른 제반 물성의 증가 및 감소 경향은 연화제의 종류, SBS의 함량 및 접착제의 종류 및 함량 등에 따라 약간씩 다르게 나타날 것으로 생각된다. 폐식용유의 함량 변화에 따른 아스팔트 봉합재의 물성을 측정하여 Table 2에 나타내었다. 예상대로 Figure 1에 도시한 바와 같이 폐식용유 함량이 30 phr(A6)에서 65 phr(A9)로 증가함에 따라 침입도는 증가하였고 연화점은 감소



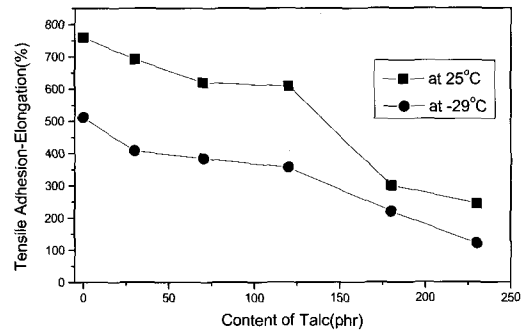
**Figure 1.** Penetrations and softening points of asphalt sealant compounds as a function of waste edible oil content.



**Figure 3.** Penetrations and softening points of asphalt sealant compounds as a function of talc content.



**Figure 2.** Elongations of asphalt sealant compounds as a function of waste edible oil content. The tensile adhesion tests were conducted both at 25°C and -29°C.



**Figure 4.** Elongations of asphalt sealant compounds as a function of talc content. The tensile adhesion tests were conducted both at 25°C and -29°C.

하였다. 침입도의 경우 A6의 배합물만이 신축이음용 봉합제(joint sealant)에 대한 침입도 규격(Table 4의 ASTM D 1190 및 3405)을 만족하였다. 봉합제의 흐름성 측정값은 폐식용유 함량에 비례하여 매우 크게 증가하였는데 중량비로 15 wt% 이상인 A8(약 15 wt%)과 A9(약 17.5 wt%)의 경우에는 내열성이 불량하여 Table 4의 신축이음용 봉합제에 대한 흐름성 기준(3 mm 또는 5 mm 이하)을 크게 상회한 것으로 나타났다. 그리고, 인장 접착 신율은 Figure 2에 나타난 것과 같이 상온 및 저온 모두에서 폐식용유 함량에 비례하여 증가하는 것으로 나타났다. 인장 접착 신율에 대한 규정은 ASTM D 3406에서 표준조건(23 ± 2°C)에서 측정된 인장 접착 신율이 최소 500%로 한정된 것이 유일한 것으로 A6 배합물을 제외하고 A7~A9의 배합물들은 모두 이 규격을 만족한다.

폐식용유를 이용한 아스팔트 봉합제의 경우 모든 물성을 규격에 적합하게 하는 가장 쉽고 경제적인 방법은 증량제를 배합하는 것이다. 증량제로 talc의 첨가는 경제적인 측면외에 침입도를 감소시키고 연화점을 증가시키는 장점이 있으나 신도 및 인장 접착 특성은 저하시키는 단점이 있다.<sup>10</sup> 이밖에도 유기 필러로 페타이어 고무 분말을 첨가하는 방법<sup>1,2,22</sup>도 사용 가능하나 본 연구에서는 생략하였다. talc 함량에 다른 아스팔트 봉합제의 물성 변화는 Table 3에 나타내었다. Figure 3에 도시한 바와 같이 talc의 함량 증가에 따라 침입도는 감소하고 연화점은 증가하는 경향이 뚜렷하게 나타났다. 상온 및 저온에서의 인장 접착 신율은 모두 talc의 첨가량이 증가함에 따라 감소하는 경향을 보였다(Figure 4). A14 및 A15 배합물들은 침입도 및 흐름성이 신축이음용 봉합제에 대한 ASTM



규격들(ASTM D 1190 및 3405)을 만족하였고 저온에서의 인장 접착 신율 결과로 볼 때 50%(1/2 inch) 신장 및 수축을 반복하는 접착(bond) 시험을 통과할 것으로 생각된다. 또한, A5와 A14의 두 배합물에 대한 물성 결과를 볼 때 SBS 함량과 석유수지의 함량을 약간 증가시키면 저온 인장 물성이 뛰어나면서도 ASTM D 5078의 제반 규정을 만족하는 즉, 침입도가 70 이하인 균열 봉합제(crack filler)의 제조도 가능하다고 판단된다.

#### IV. 결 론

본 연구에서는 아스팔트와 SBS를 기본 성분으로 하고 DCDP계 석유수지를 접착제로 적용한 아스팔트 봉합제에 여러 종류의 연화제를 첨가하여 물성을 비교하고 폐식용유를 연화제로 선택하여 함량에 따른 물성 변화를 조사하였으며 끝으로 탈크 충전제를 배합 실험하여 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1. 아스팔트 봉합제의 연화제로서 폐식용유가 파라핀계 또는 방향족계 공정유와 병커C유에 비해 아스팔트와 SBS간의 상용성 및 저온 인장 접착 신율을 보다 더 향상시키는 것으로 나타났다.
2. DOP를 사용한 아스팔트 봉합제의 경우 폐식용유를 사용한 것보다 저온 접착성은 약간 더 높으나 연화점 감소가 매우 크게 나타났으므로 아스팔트와 SBS간의 상용성 증가 및 가소화 효과가 보다 더 뛰어난 것으로 판단된다. 그러나, 봉합제의 내열성, 경제성 및 환경적 측면에서는 폐식용유를 사용하는 것이 보다 바람직한 것으로 생각된다.
3. 폐식용유의 함량이 증가함에 따라 아스팔트 봉합제의 침입도 및 흐름성은 증가하였고 연화점은 감소하였으며 상온 및 저온에서의 인장 접착 신율은 증가하였다.
4. 끝으로 탈크 충전제를 첨가하여 ASTM 규격에 적합한 신축이음용 봉합제(joint sealant)와 균열 봉합제(crack filler)를 제조할 수 있음을 증명하였다.

#### 참 고 문 헌

1. F. R. Davis, US Patent 4485201 (1984).
2. R. L. Cottingham, D. J. Thorpe, and E. Bickerstaff, US Patent 4324504 (1982).
3. R. F. Ju, Y. L. Lee, S. H. Lin, and W. J. Burke, "Surface Modification of Aggregate in Asphalt Concrete", *Colloids and Surfaces*, **49**, 395 (1990).
4. F. J. Navarro, P. Partal, F. Martinez-Boza, C. Valencia, and C. Gallegos, "Rheological Characteristics of Ground Tire Rubber-Modified Bitumens", *Chemical Engineering Journal*, **89**, 53 (2002).
5. F. C. Miknis and L. C. Michon, "Some Applications of Nuclear Magnetic Resonance Imaging to Crumb Rubber Modified Asphalts", *Fuel*, **77**, 393 (1998).
6. G. Kraus, "Modification of Asphalt by Block Polymers of Butadiene and Styrene", *Rubber Chem. Technol.*, **55**, 1389 (1982).
7. M. G. Bouldin, J. H. Collins, and A. Berker, "Rheology and Microstructure of Polymer/Asphalt Blend", *Rubber Chem. Technol.*, **64**, 577 (1991).
8. L. H. Lewandowski, "Polymer Modification of Paving Asphalt Binders", *Rubber Chem. Technol.*, **67**, 447 (1994).
9. Z. Liang and S. A. M. Hesp, "In Situ Steric Stabilization of Polyethylene Emulsions in Asphalt Binders for Hot-Mix Pavement Applications", *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, **81**, 239 (1993).
10. 김 제훈, "LDPE를 이용한 아스팔트 실란트의 성능개선", Thesis, Kunsan National University, 2001.
11. S. Hınıslıoglu and E. Agar, "Use of Waste High Density Polyethylene as Bitumen Modifier in Asphalt Concrete Mix", *Materials Letters*, **58**, 267 (2004).
12. C. Giavarini, F. De Fillipis, M. L. Santarelli, and M. Scarsella, "Production of Stable Polypropylene-Modified Bitumens", *Fuel*, **75**, 681 (1996).
13. A. Kellomaki and M. Korhonen, "Dispersion of Polyolefins in Bitumen by Means of Tall Oil Pitch, and Microscopic Characterization of Mixes", *Fuel*, **75**, 896 (1996).
14. M. Korhonen and A. Kellomaki, "Miscibilities of Polymers in Bitumen and Tall Oil Pitch under Different Mixing Conditions", *Fuel*, **75**, 1727 (1996).
15. G. Biegenzein, US Patent 4314921 (1982).

16. J. Stastana, L. Zanzotto, and O. J. Vacin, "Viscosity Function in Polymer-Modified Asphalts", *Journal of Colloid and Interface Science*, **259**, 200 (2003).
17. M. Garcia-Morales, P. Partal, F. J. Navarro, F. Martinez-Boza, C. Gallegos, N. Gonzalez, and M. E. Munoz, "Viscous Properties and Microstructure of Recycled EVA Modified Bitumen", *Fuel*, **83**, 31 (2004).
18. H. Jin, G. Gao, Y. Zhang, Y. Zhang, K. Sun, and Y. Fan, "Improved Properties of Polystyrene-Modified Asphalt Through Dynamic Vulcanization", *Polymer Testing*, **21**, 633 (2002).
19. Y. Ruan, R. R. Davison, and C. J. Glover, "The Effect of Long-term Oxidation on the Rheological Properties of Polymer Modified Asphalts", *Fuel*, **82**, 1763 (2003).
20. U. Isacson and H. Zeng, "Relationships Between Bitumen Chemistry and Low Temperature Behaviour of Asphalt", *Construction and Building Materials*, **11**, 83 (1997).
21. R. Varma, H. Takeichi, J. E. Hall, Y. F. Ozawa, and T. Kyu, "Miscibility Studies on Blends of Kraton Block Copolymer and Asphalt", *Polymer*, **43**, 4667 (2002).
22. A. A. Yousefi, A. Ait-Kadi, and C. Roy, "Effect of Used-Tire-Derived Pyrolytic Oil Residue on the Properties of Polymer-Modified Asphalts", *Fuel*, **79**, 975 (2000).
23. G. Wen, Y. Zhang, Y. Zhang, K. Sun, and Y. Fan, "Rheological Characterization of Storage-Stable SBS-Modified Asphalts", *Polymer Testing*, **21**, 295 (2002).
24. A. Jimenez, L. Torre, and J. M. Kenny, "Thermal Degradation of Poly(vinyl chloride) Plastics Based on Low-migration Polymeric Plasticizers", *Polymer Degradation and Stability*, **73**, 447 (2001).
25. N. I. Sax and R. J. Lewis, Sr., "Hawley's Condensed Chemical Dictionary", 11th ed., p. 393, Van Nostrand Reinhold, New York, 1987.