

# 친환경 고성능 지오폐리머 페이스트의 적정배합 도출에 관한 연구

## A study on optimum mixing derivation of the environment-friendly high performance geopolymer paste

이 강 필\*      도 윤 석\*      이 상 수\*\*      송 하 영\*\*  
Lee, Kang-Pil    Do, Yun-seok    Lee, Sang-Soo    Song, Ha-Young

### Abstract

After inquiring into physical characteristics of using fly ash and alkali solution, it was found that higher pH density is favorable to strength development at early age and the higher the age is, the higher the compressive strength gets. Also, it was found that when there is more addition of activator, the compressive strength is higher. I was shown that more than atmospheric curing, steam curing was favorable for development of compressive strength. When the temperature of curing temperature was higher, most of the compressive strengths were higher.

Thus, based on this study, it was understood that environmental-friendly chemically combined concrete using fly ash and alkali solution can be utilized without using cement.

키 워 드 : 지오폐리머, 플라이애쉬, 자극제, 양생온도  
Keywords : Geopolymer, Fly-ash, Activator, Curing Temperature

### 1. 서 론

세계가 빠르게 성장해 감에 따라 지구도 빠르게 변해갔으며, 산업혁명 이후 지구는 더워지기 시작하여 이제는 세계의 기후가 바뀌게 되어 이러한 기상이변을 막고자하는 노력이 시작되었다. 그 대안으로 지구온난화 규제 및 방지의 국제 협약인 교토 의정서가 발효되어 온실가스 감축 목표치를 규정하여 2012년까지 온실가스를 줄여야 한다.

2002년 IEA(국제에너지기구)의 통계에 따르면 한국의 연간 이산화탄소 배출량은 2000년을 기준으로 했을 때, 한 해 동안 선진국들은 배출량이 줄어든 것으로 조사되었다. 또한, 한국이 배출한 온실가스 즉, 이산화탄소는 모두 4억 3400만 톤으로 세계 9위이며, 세계 전체 배출량의 1.8%를 차지한 것으로 나타났다. 더욱이 1990년 이후 배출량 증가가 85.4%로 나타나 세계최고의 증가세를 기록하고 있다.

한편, 콘크리트는 주요 건설재료로서 현대 건축문화 발전에 큰 기여를 하였다. 그러나, 콘크리트의 접착제 역할을 하는 시멘트는 그 소성과정에 있어서 1300℃이상의 막대한

에너지가 소비될 뿐 아니라 제조과정에서 대기중에 많은 양의 이산화탄소를 배출하여, 전 세계적으로 총 7%를 차지하며, 매년 3%씩 증가하는 추세이다. 따라서 전 세계적으로 친환경적인 콘크

리트에 대한 다양한 연구를 추진하고 있다. 그 중에서도 시멘트제조 시 발생하는 이산화탄소의 배출량을 줄이고자 콘크리트에 사용되는 시멘트를 대체하는 연구가 활발히 진행되고 있으며, 이런 연구로는 플라이애쉬 및 고로슬래그 등과 같은 무기물이 알칼리 자극제에 의해 활성화 되어 결합재로서 작용하게 된다.

따라서, 본 연구에서는 시멘트를 사용하지 않은 친환경 화학적 결합 지오폐리머 페이스트를 연구할 목적으로, 국내 석탄 화력 발전소에서 부산물로 생성되는 플라이애쉬를 재활용하였다.

알칼리 자극제를 이용하여 고온의 소성과정 없이 상온에서 제조가 가능한 플라이애쉬 무기결합재를 제조하고, 플라이애쉬와 알칼리 용액의 종류와 첨가율 변화에 따른 강도발현 및 기타 물성에 미치는 영향을 분석하였다. 또한, 적정 배합을 도출하여 시멘트사용을 대체하여 시멘트 제조 시 발생하는 이산화탄소의 배출량 감소와, 광물자원 고갈과 산업폐기물 매립에 따르는 환경적, 경제적 부하를 감소시키고자 한다.

### 2. 실험계획 및 방법

#### 2.1 사용재료

##### 2.1.1 플라이애쉬

본 연구의 실험에서 사용된 플라이애쉬는 KS 1 5405 규정을 만

\* 정회원, 국립한밭대학교 공과대학 건축공학과, 학사과정  
\*\* 정회원, 국립한밭대학교 공과대학 건축공학과, 교수, 공박

축하는 B화력발전소에서 발생하는 유연탄 플라이애쉬로 실리카(SiO<sub>2</sub>), 알루미늄(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), 산화철(Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 등이 높은 산화물을 함유하고 있으며, 이 산화물은 플라이애쉬의 90% 이상을 차지한다. 플라이애쉬의 물리·화학적 특성은 표 1과 같다. 플라이애쉬는 다공성이고, 단단한 구형입자와 부정형입자의 혼합물로서 입자 크기는 탄종이나 분쇄도에 따라 다르나 보통 1.0~150μm 정도이며 평균입경은 20~30μm로서 시멘트의 입경보다 약간 작다. 플라이애쉬의 표면층은 유리질로 이루어져 있으며 유리표면층이 조밀하고 화학적으로 안정한 상태를 가지고 있다. 이 표면층은 내부의 반응성이 높고 공극이 많은 비경정질의 구성물질을 보호하는 역할을 하고 있다. 규소(Si), 알루미늄(Al), 칼슘(Ca)의 실리카-알루미늄 유리질 결합이 견고하여 반응이 일어나기 위해서는 이 결합을 분해하여야 한다. 따라서, 반응을 활성화시키기 위해 황산염 또는 알칼리 자극제의 첨가나 높은 염기성으로 치밀하고 견고한 플라이애쉬의 표면층을 침식하여 내부의 반응 물질을 노출시켜야 한다. 실리카-알루미늄 결합을 분해하기 위해 알칼리 자극제의 선택은 중요한 요소이다.

표 1. 플라이애쉬의 물리적·화학적 성질

SiO <sub>2</sub> <sup>2</sup> (%)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> <sup>3</sup> (%)	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> <sup>3</sup> (%)	CaO (%)	MgO (%)	SO <sub>3</sub> <sup>3</sup> (%)	L.O.I (%)	Surface area (cm <sup>2</sup> /g)	Density (g/cm <sup>3</sup> )
55.3	25.8	5.5	2.9	0.8	0.3	3.2	4,369	2.18

### 2.1.2 알칼리 자극제

OH<sup>-</sup>의 농도가 높으면 실리카-알루미늄 유리질 결합을 빨리 분해시키고 많은 양의 반응 조직들을 생성하게 된다. 따라서, 액상에서 높은 pH값은 플라이애쉬 활성화에 중요한 결정요소로서 알칼리 자극제로 플라이애쉬의 반응 물질 분해를 통한 반응을 유도하여 높은 강도 및 내구성을 가지는 지오폴리머 페이스트를 제조하는 것이다.

표 2. 알칼리 자극제의 성상 및 비중

Activator type	State	specific gravity
NaOH (sodium hydroxide)	White powder	2.13
Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> (sodium carbonate)	White powder	2.53
Na <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub> (sodium silicate)	White powder	2.40
Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> (sodium sulfate)	White powder	2.70
K <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub> (potassium silicate)	Liquid phase	1.60

따라서 본 실험에서는 수화반응 유도를 위한 알칼리 자극제로는 수산화나트륨(NaOH), 탄산나트륨(Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>), 규산나트륨(Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>), 규산칼륨(K<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>), 황산나트륨(Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)을 사용하였다. 또한, 알칼리 자극제를 종류별로 플라이애쉬 중량에 각각 5, 7, 10(%)를 첨가하여 첨가율과 재령별 압축강도 및 물리적 성질과

특성을 살펴보았으며, 본 연구에 사용한 알칼리 자극제의 종류 및 성상, 그리고 비중은 표 2와 같다.

### 2.2 실험계획

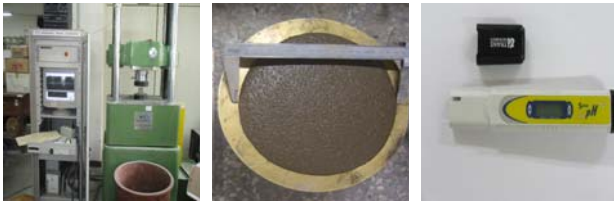
본 연구는 플라이애쉬를 알칼리 자극제를 사용하여 시멘트를 사용하지 않은 친환경, 신개념의 지오폴리머 페이스트 공시체를 제조하여, pH, 테이블 플로우와 압축강도를 측정 및 분석하여 알칼리 자극제의 종류, 재령, 양생온도와의 상호관계와 경화된 공시체의 물리적 특성을 검토하기 위한 실험인자 및 수준은 표 3과 같이 설정하였으며, 배합은 표 4와 같이 설정하였다. 플라이애쉬와 알칼리 자극제의 물리적 특성을 검토하기 위한 알칼리 자극제로는 수산화나트륨(NaOH), 탄산나트륨(Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>), 규산나트륨(Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>), 규산칼륨(K<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>), 황산나트륨(Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)의 5수준과 알칼리 자극제의 첨가율은 결합재 중량의 5, 7, 10(%)의 3수준으로 설정하였다. 또한, 플라이애쉬는 그 자체는 수경성이 없고 시멘트의 수화생성물인 수산화칼슘과 같은 알칼리 물질의 자극에 의해서 서서히 반응하는 잠재수경성이 있는 것으로 알려져 소석회(수산화칼슘)를 15% 치환하였으며, 양생온도에 따른 경향을 알아보기 위하여 기건양생, 고온양생 40, 60(°C)의 3수준으로 설정하여 실험하였다. 측정 장비 및 실험항목은 사진 1에 나타난 바와 같으며, 실험항목으로는 pH, 테이블 플로우, 압축강도를 측정하였다.

표 3. 실험인자 및 수준

Experimental Factor	Level	No.
Addition ratio(%)	5, 7, 10	3
Curing Level	Air dry curing High temperature curing	2
Curing Temperature(°C)	20, 40, 60	3

표 4. 모르타르 배합표

Type	Addition ratio (%)	W/B	Water (g)	Binder		
				Cement (g)	Fly-ash (g)	Ca(OH) <sup>2</sup> (g)
NaOH	5, 7, 10	35	350	0	850	150
Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>						
Na <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub>						
Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>						
K <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub>						



(a) 압축강도 (b) 테이블 플로우 (c) pH  
 사진 1. 측정항목

### 2.3 실험방법

플라이애쉬와 알칼리 자극제의 사용에 따른 물리적 특성과 적정 배합을 도출하기 위한 실험방법으로서 10리터 믹서에 먼저 결합재료는 플라이애쉬와 소석회(수산화칼슘)를 15% 치환하여 투입한 후 30~40rpm 속도로 2분간 건비빔을 실시한 다음, 알칼리 자극제를 각각 플라이애쉬의 중량에 각각 종류별로 5%, 7%, 10%를 첨가하여 배합수에 미리 용해하여 투입한 후 70~80rpm 속도로 3분간 믹싱하여 페이스트를 제조하였다.

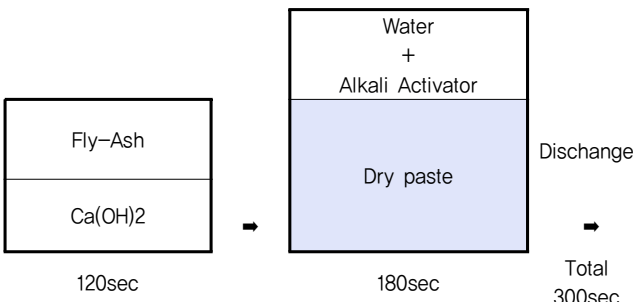


그림 1. 비빔방법

## 3. 실험결과 및 고찰

### 3.1 pH 측정

그림 2는 자극제의 종류와 첨가율에 따른 pH변화를 측정하기 위하여 결합수에 자극제의 첨가율을 달리하여 pH미터(HANNA-HI8314)로 측정한 결과 pH농도는 수산화나트륨(12.6~13.4), 규산칼륨(12.8~13.2), 규산나트륨(11.8~12.8), 탄산나트륨(11.7~12), 황산나트륨(7.1~8)순으로 나타났다. 황산나트륨의 경우 알칼리 자극제의 낮은 pH로 인하여 초기재령에서는 플라이애쉬와 반응이 늦어져 초기강도 발현이 늦어지지만 재령이 증가할수록 강도 증가 현상을 보인다. 또한, pH농도는 알칼리활성화 페이스트의 초기 강도에 영향을 미치며 pH농도가 높을수록 발현이 높아지는데, 이는 플라이애쉬의 규산질 겔 피막 파괴에 따라 잠재 수경성이 가속화됨으로 사료되며, 첨가율에 따른 pH농도의 변화는 큰 경향은 나타나지 않았다.

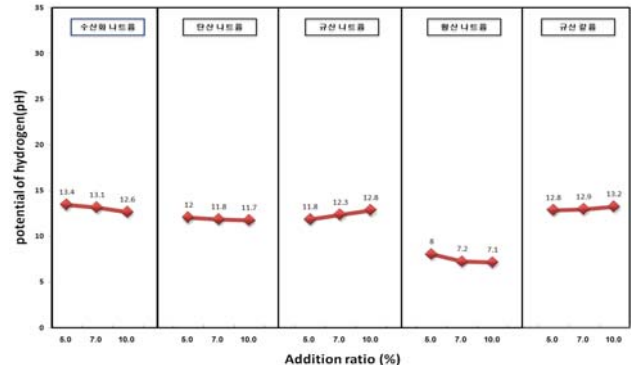


그림 2. 알칼리 자극제의 종류와 첨가율에 따른 pH 변화

### 3.2 플로우 변화

그림 3은 자극제의 종류와 첨가율에 따른 플로우 변화를 알아본 결과 수산화나트륨(NaOH)·황산나트륨(Na2SO4)·탄산나트륨(Na2CO3)·규산칼륨(K2SiO3)·규산나트륨(Na2SiO3)순으로 나타났다. 수산화나트륨과 규산나트륨의 경우 치환율이 증가할수록 플로우는 감소하였으며, 황산나트륨, 탄산나트륨, 규산칼륨은 첨가율이 증가할수록 플로우는 증가하였다.

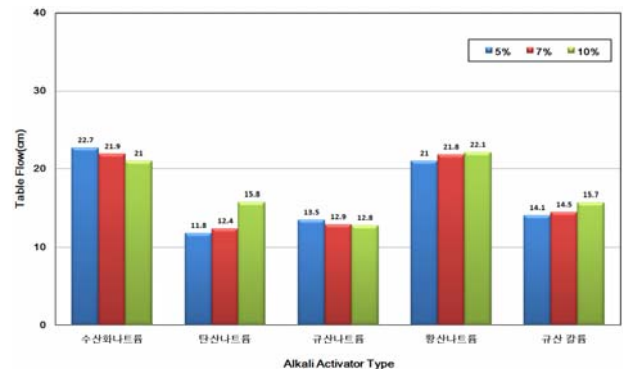


그림 3. 알칼리 자극제의 종류와 첨가율에 따른 플로우 변화

### 3.3 압축강도

그림 4-6은 자극제의 종류 및 첨가율에 따른 재령별, 양생온도별 압축강도를 나타낸 것이다. 기건양생보다 고온양생 즉 40, 60℃양생 시 강도가 크게 나타났으며, 이는 고온 양생 시 모르타르 내부의 수분감소로 인한 pH상승으로 플라이애쉬를 활성화 시킬 수 있는 고알칼리 환경으로 변화되어 플라이애쉬의 중합반응이 가속화 되었기 때문으로 사료된다. 40℃고온양생보다 60℃고온양생의 경우가 압축강도에 유리하게 나타났다. 또한 기건양생, 고온양생(40, 60℃)에서 수산화나트륨>탄산나트륨>황산나트륨>규산나트륨>규산칼륨의 순서로 압축강도가 나타났다. 첨가량이 높을수록 강도는 대부분 높게 나타났으며, 재령이 증가할수록 압축강도는 증가하는 경향을 나타내었다. 규산칼륨과 규산나트륨의 경우 40℃, 60℃의 재령 7일과 재령 28일 사이에 강도저하와 강도증진이 없는 것은 고온양생으로 재령 7일까지 플라이애쉬의 중합반응이 빠

르게 이루어져 플라이애쉬의 잠재적 중합반응이 대부분 발생함으로써 그 이후의 재령에서 강도 증진이 작은 것으로 분석된다. 또한 수산화나트륨, 황산나트륨, 탄산나트륨의 경우 고온양생 시 재령 7일과 28일 강도에서 강도저하 현상을 보이기도 하는데, 이는 고온 양생 시 페이스트 내부의 수분이 증발되어 나오는 과정에서 내부 균열이 생겨 강도가 저하되는 것으로 사료된다.

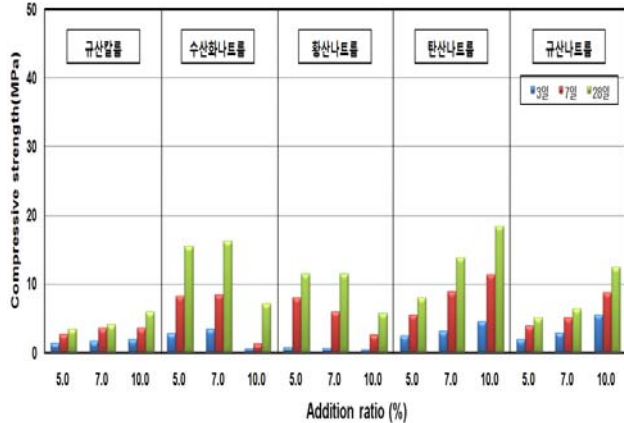


그림 4. 재령별 압축강도(기건양생 20℃)

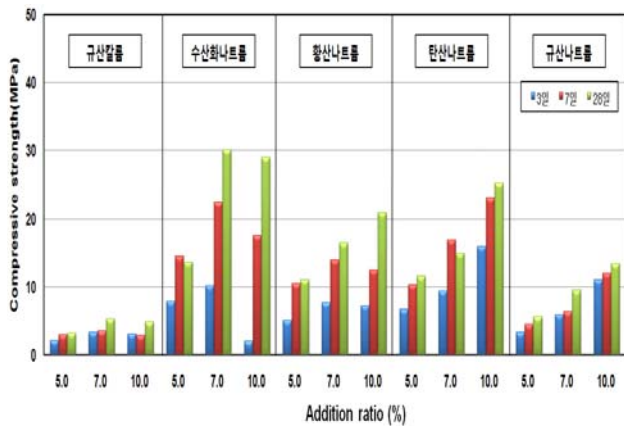


그림 5. 재령별 압축강도(고온양생 40℃)

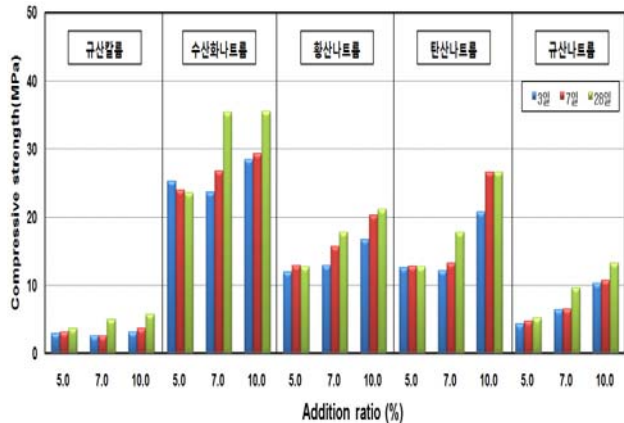


그림 6. 재령별 압축강도(고온양생 60℃)

#### 4. 결 론

본 연구에서는 시멘트를 사용하지 않은 친환경 화학적 결합 지오폴리머 페이스트를 연구개발을 위한 것으로 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

- 1) 알칼리 자극제의 종류와 첨가율에 변화를 주어 pH농도를 측정하였다. 그 결과 자극제의 종류에 따라 pH농도에 변화를 나타내나, 첨가율에 대한 pH농도의 변화는 미세한 것으로 나타났으며, 수산화칼슘의 경우 pH농도가 높을수록 초기재령에서 강도발현이 높았다. Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>의 경우 낮은 pH로 초기재령에서 플라이애쉬와 반응이 늦어져 강도발현이 낮지만 재령이 증가할수록 높은 강도 증진을 나타냈다.
- 2) 유동성을 알아본 결과 수산화나트륨과 규산나트륨의 경우 치환율이 증가할수록 플로우는 감소하였으며, 황산나트륨, 탄산나트륨, 규산칼륨은 치환율이 증가할수록 플로우는 증가하였다.
- 3) 압축강도를 알아본 결과 첨가율이 높을수록 압축강도는 대부분 높게 나타났으며, 기건양생과 고온기양생(40, 60℃)에서 기건양생보다 고온양생(40, 60℃)의 경우 압축강도가 높게 나타났다. 또한, 수산화나트륨>탄산나트륨>황산나트륨>규산나트륨>규산칼륨의 순서로 압축강도가 나타났다.

향후 환경오염의 심각성을 인식하고 환경 친화적인 연구가 필요하며, 지속적인 연구와 데이터 축적이 이행되어 시멘트 대체재료 개발이 필요할 것으로 사료된다.

#### 참 고 문 헌

1. 류금성의 4명, 고로슬래그 알칼리 활성 모르타르의 유동성 및 압축강도 평가, 한국콘크리트학회 학술발표회 논문집, 제20권 제2호, pp.613~616, 2008.11
2. 송진규의 3명, 무시멘트 알칼리 활성 고로슬래그 콘크리트의 배합에 따른 재료 역학적 특성, 한국콘크리트학회 학술발표회 논문집, 제20권 제1호, pp.1005~1008, 2008.4
3. 안양진의 3명, 자극제의 종류에 따른 알칼리 활성화 슬래그 모르타르의 기초 특성, 한국콘크리트학회 학술발표회 논문집, 제18권 제2호 pp.789~792, 2006.11
4. 양근혁의 1명, 알칼리 활성화를 이용한 무시멘트 콘크리트의 구조 성능 및 적용 한국콘크리트학회 제19권, pp.42~48, 2007
5. 이화영의 4명 알칼리 자극제를 이용한 비소성 시멘트 모르타르의 압축강도 개선, 대한건축학회 논문집, pp.677~670, 2006.10