

# Geopolymer의 현황과 전망

글 \_ 이종규, 추용식, 정석조 || 요업기술원 시멘트·콘크리트팀  
ljk25@kicet.re.kr

## 1. 서 론

2005년 2월 16일 온실가스 감축을 의무화하는 교토의 정서가 공식 발효되었다. 우리나라에는 유엔 기후변화협약에서 개발도상국으로 분류되어 당장 온실가스를 감축할 의무는 없으나 OECD 회원국으로 멕시코와 더불어 온실가스 감축 압력을 받고 있는 실정이다. 부존자원이 거의 없고 에너지 다소비형 산업구조를 가진 우리로서는 무엇보다 대체에너지 개발과 산업구조 전반에 걸친 환경친화적 산업으로의 전환이 시급한 실정이다. 현재 대부분의 건설 토목 등의 현장에서 일반적으로 사용되는 콘크리트는 포틀랜드 시멘트를 결합재로 사용하고 있다. 이와 같은 콘크리트의 재료가 되는 포틀랜드 시멘트를 제조하기 위해서는 많은 자원과 에너지를 소비하여야만 한다. 특히, 시멘트 제조는 지구온난화의 주요 원인으로 지적되고 있는 CO<sub>2</sub> 가스를 대량으로 발생시켜, 시멘트 1kg을 제조

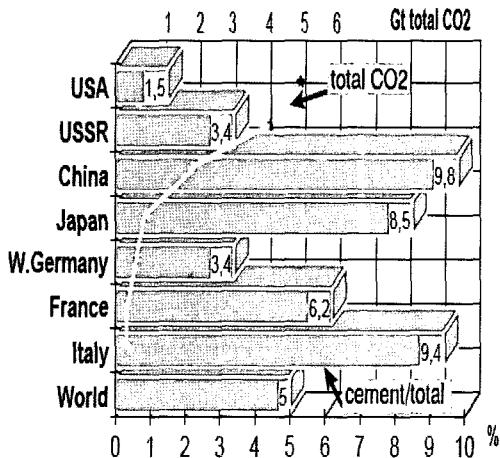


Fig. 2. Total national CO<sub>2</sub> emission in 1000million tonnes(Gt.) and ratio cement-CO<sub>2</sub>/total in percent.

하는데 CO<sub>2</sub> 가스를 약 950g을 방출하는 것으로 알려져 있다. 전 세계적으로 포틀랜드 시멘트의 제조량은 해마다 3%씩 증가하고 있다. 제조과정에서 발생하는 온실가스 배출량은 해마다 약 135만톤에 이르며 대기중에 배출되는 전 세계 온실가스 배출량의 7%를 차지하고 있다.

또한 시멘트를 생산함에 있어 주원료가 석회석인데, 이를 채광하는 과정에서 발생되는 산림의 훼손이나 부산물은 환경에 보다 많은 부담을 주고 있는 실정이다. 특히 세계정세 불안과 에너지 자원의 고갈에 따라 에너지 자원절감 중요성이 극대화되어가는 시점이다. 이에 부응하여 최근 세계적으로 관심이 집중되고 있는 연구·생산분야는 천연자원 사용량을 줄이고 소성 공정을 도입하지 않은 새로운 개념의 비소성 무기계 바인더를 개발하고자 하는 것이다. 현재 비소성 무기바인더의 역할을 수행할 수 있는 물질로는 산업부산물/폐기물인 플라이애쉬, 슬

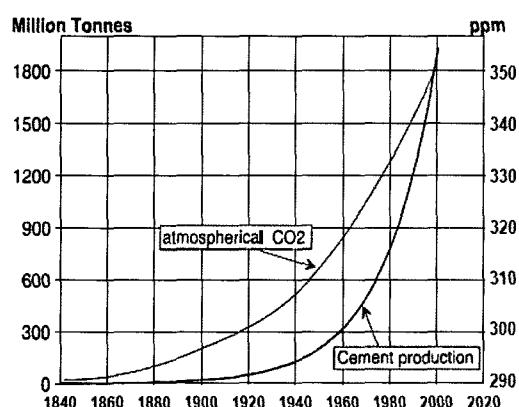


Fig. 1. Atmospheric CO<sub>2</sub> concentration(ppm) and world portland-cement production(million tonnes) for the period 1840-2000. Sources : IPCC and Cembureau.



래그 및 brick powder와 천연원료인 점토 및 하소 kaolin 등이 있다.

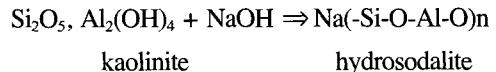
그 중 플라이애쉬와 슬래그는 시멘트에 혼합 사용 시, 시멘트 수화물과 반응하여 최종 제품의 물성을 양호하게 하는 재료이다. 특히, 슬래그는 알카리 자극에 의해 자체적으로 수화할 수 있는 잠재 수경성을 갖는 대표적 물질로 알려져 있으나 플라이애쉬는 자체적으로 수화할 수 있는 잠재 수경성을 거의 발휘하지 못하지만 유럽 및 미국 등의 선진국에서는 플라이애쉬 자극제로 알카리 용액을 사용하여 응결·경화시키고자 하는 연구가 다수 진행되고 있으며, 일부에서는 이미 상품화하여 사용하고 있는 실정이다.

플라이에쉬는 알카리 용액으로 활성화 시킬 경우, aluminosilicate gel이라는 새로운 생성물을 만든다. 이 생성된 aluminosilicate gel은 바인더로 작용하여 입자들을 결합시키거나 혹은 화학적으로 결합한 하나의 세라믹 덩어리(Chemically bonded ceramics)로 만든다.

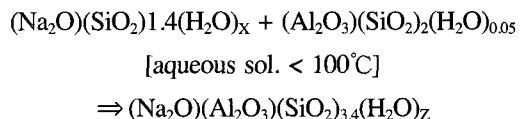
최근 실온에서 합성된 aluminosilicate는 우수한 물리적·화학적 특성으로 연구동향의 주요 관심사로 대두되고 있다. 합성 aluminosilicate는 천연원료를 사용하는 시멘트와 달리 산업 폐기물을 사용하고, 고온 소성반응을 거치지 않으므로 경제적 측면에서도 대단한 장점을 가지고 있다. 특히 제조 방법에 따라 시멘트보다 우수한 물리적 특성을 나타내기도 하여 상업적 관심이 고조되고 있으며, 이러한 aluminosilicate를 Inorganic binder 혹은 geopolymers라고 명명하고 있다. 본고에서는 이와 관련하여 국내·외에서 연구·개발되고 있는 geopolymers에 대하여 소개하고자 한다.

## 2 Geopolymer

1972년 J.P. Latapie와 M. Davidovics 연구팀은 소성 반응을 거치지 않으며 450°C 이하의 온도에서 kaolinite의 알카리 반응을 통하여 water-resistant 세라믹 타일을 제조하였는데 이때 100~150°C의 범위에서 NaOH 알카리 용액과 반응하는 kaolinite는 Si-O-Al 결합을 한 반응생성 물이 나타난다.



이 반응생성물을 토대로 프랑스의 연구자인 Davidovits에 의해 geopolymers의 연구가 시작되었다. 그의 초기 특허에 따르면 가장 간단한 geopolymers는 메타카올린과 알카리 실리케이트 용액이 반응한 혼합물로 구성된다고 하였으며 양생온도를 20~150°C 범위로 유지시켰을 때 발열반응과 Si-O-Al 결합을 한 반응생성물이 나타난다고 하였다. 그러나 현재에는 플라이애쉬를 비롯한 다양한 폐기물에 대한 연구가 진행되어, geopolymers의 구조가 양생온도뿐만 아니라 활성화 용액의 농도에 따라서도 변화한다는 것을 밝혀내었다.



(여기서 X와 Z는 실리케이트 용액과 생성물에 존재하는 결합수의 양)

초기 플라이애쉬가 연구대상에서 크게 관심을 받지 못한 이유는 플라이애쉬가 실온과 대기압 조건에서 물과 반응하여 매우 빠르게 분해되나, 이 분해 물질은 1차 상 위에 낮은 용해도의 2차상으로 침적하여 1차상의 계속적인 분해를 매우 느리게 하거나 혹은 차단시켜 반응성을 제한시킨다. 즉, 생성된 2차상은 이온이나 물의 이동을 컨트롤하는 확산인자로 작용하기 때문이다. 그러므로 산업에 응용하기 위한 관련 제품을 개발하기 위해서는 플라이애쉬의 활성화가 필요해졌으며, 이를 위한 한 방법으로 고농도의 알카리 용액이 사용되어졌다(확산속도의 증가목적). 예를 들어 고농도의 알카리 활성화와 연속적인 수열 합성법으로 pore를 조절한 결정질 aluminosilicate를 제조할 수 있으며, 상대적으로 solid/liquid의 비가 높은 경우에는 수열합성 없이도 비정질이고 물리적으로 강한 aluminosilicate를 제조할 수 있는 기술을 개발하였다.

또한 자극제로써 수용성 실리케이트 용액이 개발되기도 하였는데, 이는 높은 농도의 실리케이트 용액이 플라

Table 1. Geopolymer의 분류와 용도

Category	Structure	Alkali cation	Utilization
Poly(sialate) Si:Al = 1		K-PS	Thermal insulation
		Na-PS	Fire-resistant
Poly(sialate-siloxo) Si:Al = 2		K-PSS	Refractory
		Na-PSS	Fire-resistant
		K, Ca-PSS	Toxic waste
Poly(sialate-disiloxo) Si:Al = 3		K-PSDS	Tooling composite
		Na-PSDS	Refractory
		K, Ca-PSDS	Fire-resistant
Sialate link Si:Al > 3		Na, K	Fire-resistant

이에쉬의 분해와 침전반응을 변화시켜 응결과 강도를 컨트롤할 수 있기 때문이었다.

이와 같이 geopolymers는 화학적으로 silico-aluminates를 기본으로 하고 있으며 poly(sialate)라고 나타내기도 한다. Sialate는 silicon-oxo-aluminate의 약자로서 이들의 분류와 용도는 Table 1에 나타내었다.

### 3. 연구동향

국외의 경우 플라이애쉬 및 기타 폐기물을 활용한 무기계 결합재에 대한 연구는 1960년대부터 시작되었으며, 1990년대부터 체계적이고 생산적인 연구가 진행되었다. 제품으로 판매할 수 있는 수준의 무기계 결합재는 1980년대 중반부터 생산되었으며, 현재는 다수의 제품이 판매되고 있다. 그러나 아직까지는 보통 포틀랜드 시멘트를 대체하여 범용으로 사용되지 않으며, 이는 보통 포틀랜드 시멘트와 동등 기능을 갖는지의 여부가 완벽히 검토되지 않았기 때문이다. 이에 빌맞쳐 최근에는 사용원료 및 자극제의 종류에 따른 무기계 결합재의 생성 메카니즘을 규명하고 geopolymers 시멘트, geopolymers 콘크리

트 및 고성능을 요구하는 응용제품에 대한 물리·화학적 특성을 개선하여 제품화하는데 주력하고 있다.

Fig. 3은 현재 geopolymers 제조에 있어서의 주 원료 및 제조방법을 나타내었다.

#### 3.1 Low CO<sub>2</sub> cement

플라이애쉬 및 각종 폐기물을 이용한 geopolymers는 Low CO<sub>2</sub> cement로서 각광받고 있다. Poly(sialate-disiloxo)는 K,Ca(-Si-O-Al-O-Si-O-Si-O)의 구조로서 이는 사장석 Na[AlSi<sub>3</sub>O<sub>8</sub>]-Ca[Al<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub>]과 유사한 물질이며 K-geopolymer에서 조장석은 정장석 K[AlSi<sub>3</sub>O<sub>8</sub>]을 대체할 수 있는 물질이다. 또한, geopolymers는 비정질과 유리와 같은 고상물질을 포함하고 있다.

- Ca-poly-di-(sialate) (Ca)(Si-O-Al-O-)<sub>2</sub>, Si:Al=1 (anorthite CaSi<sub>2</sub>Al<sub>2</sub>O<sub>8</sub>)
- K-poly(sialate-disiloxo), (K)(Si-O-Al-O-Si-O-Si-O), Si:Al=3 orthoclase K[AlSi<sub>3</sub>O<sub>8</sub>]
- K-silicate cross-linked with a sialate link, Si:Al>3 (low MgO amphibole/pyroxene)

이를 통해 포틀랜드 시멘트와 geopolymers cement의 에너지 소비와 CO<sub>2</sub> 방출량을 다음과 같이 비교되어 진다.

또한, Poly(sialate-disiloxo)나 (K, Ca)-PSDS를 제조하기 위해서는 포틀랜드 시멘트 제조보다 적은 약 3.5시간이 필요하기 때문에 CO<sub>2</sub>는 포틀랜드 시멘트 대비 약 80~90%가 감축될 수 있을 것으로 예상되어진다.

Table 2. Energy needs, MJ/tonne

Type	Calcination	Crushing	Total
Portland cement	3200	430	3630
Geopolymer cement	600	390	990

Table 3. Greenhouse Gas Emission, CO<sub>2</sub> in tonne/tonne

Type	CO <sub>2</sub> emission
Portland cement	1.00
Geopolymer cement	0.15 ~ 0.20

#### 3.2 Geopolymer Cement

플라이애쉬의 알카리 활성화 반응을 통한 geopolymers cement는 앞서 전술한 환경적인 이점뿐만 아니라 높은 물리·화학적 특성을 갖고 있다.

Fig. 3. Starting substances and creation of geopolymers.

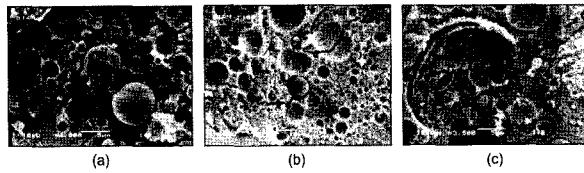


Fig. 4. Microstructural aspect of mortars : (a) room temperature, (b) drying oven 100°C, (c) autoclave 200°C.

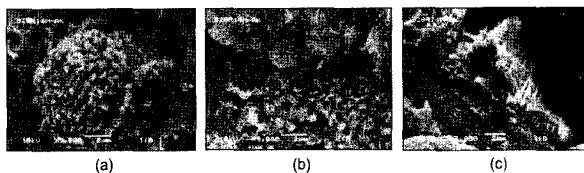


Fig. 5. Geopolymer reaction product in autoclave 200°C : (a) complex crystal structure (b) sponge-like structure (c) homogeneous matrix.

현재 대부분의 geopolymers cement의 주 원료로는 플라이애쉬가 사용되고 있으며 NaOH나 KOH등의 알카리 용액을 이용하여 다양한 양생온도범위에서 활성화반응을 촉진시키고 있으며 이들에 대한 미세구조는 Fig. 4와 Fig. 5와 유사하다.

Fig. 4의 (a)와 (b)의 경우 반응하지 않은 많은 양의 플라이애쉬가 존재함과 동시에 미세구조표면이 파괴되어 있음을 관찰할 수 있으며 이와는 반대로 autoclave에서 양생한 (c)의 경우에는 반응생성물이 조밀하게 표면에 존재함을 관찰할 수 있었다. 이를 통해 상대적으로 높은 양생온도에서 높은 물리적 특성이 나타남을 알 수 있으며 이의 형태는 Fig. 5에서 보여지듯이 3가지 형태로 표현할 수 있다. 또한 다양한 알카리 용액의 농도 및 양생 조건에 따라 약 80~100Mpa의 압축강도를 갖는 우수한 물리적 특성의 geopolymers cement를 제조할 수 있다.

### 3.3 Geopolymer concrete

시멘트에 모래, 자갈(굵은 골재)과 물을 가하여 반죽한

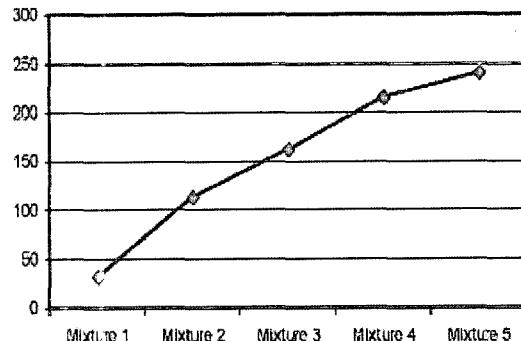


Fig. 6. Slump value for Mixtures 1 to 5.

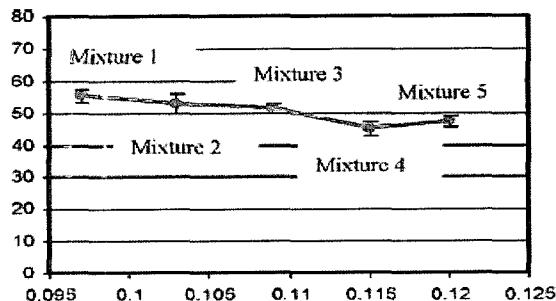


Fig. 7. Effect of molar Na<sub>2</sub>O-to-SiO<sub>2</sub> ratio on compressive strength.

것을 시멘트 콘크리트(concrete)라 하며 이 콘크리트는 구조물의 대형화·고층화 그리고 복잡화로 인해 콘크리트의 성능에 고도화를 요구하고 있다. 이에 따라 geopolymers cement의 특성을 이용한 geopolymers concrete 또한 폭넓게 연구되고 있다.

Table 4는 콘크리트 혼합비이며 Fig. 6과 Fig. 7는 혼합비에 따른 슬럼프와 압축강도를 나타내고 있다. Sodium hydroxide(NaOH)의 농도와 Na<sub>2</sub>O-to-SiO<sub>2</sub> 비가 증가함에 따라 각각 슬럼프의 값과 압축강도의 값이 증가함을 알 수 있으며 이로 인해 Na<sub>2</sub>O-to-SiO<sub>2</sub> 비가 압축강도에 큰 영향을 미침을 관찰 할 수 있었다.

Table 4. Details of the Mixtures (kg/m<sup>3</sup>)

Mixture No.	Aggregates	Fly ash	Sodium silicate	Sodium hydroxide	Super-plasticiser	Added water	Curing
1	1848	408	103	41(8M)	6	-	60°C oven
2	1848	408	103	41(10M)	6	7.5	60°C oven
3	1848	408	103	41(12M)	6	14.4	60°C oven
4	1848	408	103	41(14M)	6	20.7	60°C oven
5	1848	408	103	41(16M)	6	26.5	60°C oven

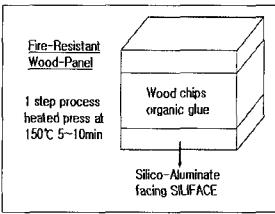
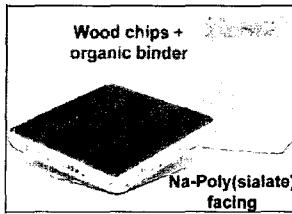


Fig. 8. Manufacture of fire-resistant wood-chip boards faced with geopolymers(Na-Poly(sialate)).

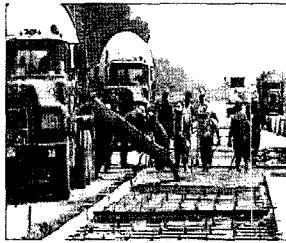


Fig. 13. High performance cement, Pyramet®.

Fig. 14. Hazardous and Radioactive Waste Treatment.



Fig. 9. Electrical fuses made with geopolymers.



Fig. 10. Brick made geopolymers.

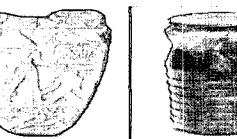


Fig. 11. Decorative items made of K-poly(sialate-siloxo)geopolymer binder.



Fig. 12. Foamed geopolymers (Na, K)-poly(sialate-siloxo) resin.

플라이애쉬를 이용한 geopolymers concrete는 보통 포틀랜드 시멘트 콘크리트보다 여러가지 이점을 가지고 있다. 이는 환경적인 요인뿐만 아니라 제조단가면에서도 포틀랜드 시멘트 콘크리트보다 약 10~30% 값이 저렴하며 낮은 수축률 및 낮은 크립(creep) 그리고 산에 대한 우수한 저항성을 가지고 있다.

#### 4. Geopolymer의 활용 영역

Geopolymer는 우수한 물리적·화학적 특성으로 비롯 많은 분야에서 응용·활용되고 있으며 관련된 제품을 생산·판매하는 회사로는 Geopolymere, RenotechOy, Siloxoo PTY. LTD 등 다수의 업체가 있다.



Fig. 15. Thermal shield made out of carbon/geopolymer composite.

가장 최초의 응용분야로는 geopolymers의 우수한 내화성을 바탕으로 1973년에 내화성이 있는 나무칩보드 판넬을 제조한 것이었으며 이 후 세라믹 분야, 장식물 등 많은 분야에서 응용되고 있다. 또한, 시멘트를 대체할 수 있는 비소성 무기결합재일 뿐만 아니라, 내화·중금속 고정화 및 단열 재료 등으로 꼭 넓게 사용될 수 있는 가능성 재료로서 다음과 같은 많은 분야에 쓰이고 있다.

#### 5. 맷음말

국외의 경우 보통 포틀랜드 시멘트 대체제로서의 geopolymers는 기초 연구단계는 이미 지나 응용화 연구 또는 제품개발 단계에 들어섰으며 성능이나 수명 향상을 위하여 또는 새로운 응용을 위하여 여러 특성을 향상시키거나 또는 가격 등의 경쟁력을 높이고자하는 노력은 계속되고 있다.

그러나 국내의 경우에는 플라이애쉬를 기본으로 한 자기 경화형 무기계 결합재에 대한 연구가 국외의 비하여 아직은 미흡한 실정이며 다량의 플라이애쉬가 발생되고 있는 우리나라의 경우 이의 재활용 방법으로 geopolymers가 좋은 한 가지 방법이라 할 수 있겠다. 현재 국내에서는 년간 5,500만톤 정도의 시멘트를 생산하고 있으며, 이에 따른 국내 규모는 년간 약 3조원정도로 추정된다. 이



중 매립·폐기되는 플라이애쉬로 시멘트를 대체하여 사용한다면 많은 경제적·환경적인 이점을 가질 수 있으며 mortar제품, 내화성을 갖는 알루미나 시멘트 및 조강성의 특수시멘트에 응용될 경우 부가가치는 더욱 상승될 것으로 판단되어진다. 이에 따른 기대효과는 다음과 같이 크게 5가지 정도로 요약해 볼 수 있다.

- 시멘트 주재료인 석회석등의 천연원료 부존문제 해결
- 각종 산업폐기물을 주재료로 사용하여 시멘트 제품 대체 가능
- 각종 산업폐기물처리에 의한 환경부하 감소
- 시멘트 제조시 천연원료 채광에 따른 산림파괴 방지
- CO<sub>2</sub> gas 발생량 감소에 따른 지구 온난화 효과 방지

그러나 이는 geopolymers가 충분히 시멘트를 대체하여 사용할 수 있는 기능을 가질 경우 가능하며 따라서 이에 대한 수 많은 연구와 더불어 적절한 활용을 더 연구한다면, 더 발전된 우수한 세라믹 제품이 될수 있을 것으로 생각된다.

또한, 앞서 살펴본바와 같이 geopolymers가 가지고 있

는 여러 물성들을 고려해 볼 때 분명 geopolymers는 현 시대의 다양한 산업에 있어 그 응용 가능성성이 충분한 재료이며 미래의 산업에서도 중요한 입지를 차지할 것으로 기대된다.

### 참고문헌

1. J. Davidovits, "30 Years of Successes and Failures in Geopolymer Applications". Market Trends and Potential Breakthroughs. GP(2002).
2. J. Davidovits, "Geopolymer chemistry and sustainable Development. The Poly(sialate) terminology : a very useful and simple model for the promotion and understanding of green-chemistry", GP(2005).
3. B. Vijaya Rangan, Djwantoro Hardjito, "Steenie E. Wallah, and Dody M.J. Sumajouw, Studies on fly ash-based geopolymers concrete", GP(2005).
4. Fongjan Jirasit, Ludger Lohaus, "Effect of high silica-content materials on fly ash-based geopolymers cement properties", GP(2005).
5. A. Palomo, M.W. Grutzeck, M.T. Blanco, "Alkali-activated fly ashes/A cement for the future", Cement and Concrete Research 29 1323-1329(1999).
6. Geopolymer 자료 <http://geopolymer.org>.

### ●● 이종규



- 1988년 한양대학교 무기재료공학과(학사)
- 1990년 한양대학교 무기재료공학과(석사)
- 1993년 한국과학기술연구원(연구원)
- 1997년 동경공업대학교(박사)
- 1998년 동경공업대학교(조수)
- 2000년 나이가타대학교(조수)
- 2000년 요업기술원 시멘트·콘크리트팀 팀장  
-현재. (책임연구원)

### ●● 추용식



- 1992년 인하대 무기재료공학과 공학사
- 1994년 인하대 무기재료공학과 공학석사
- 2005년 한양대 세라믹공학과 박사수료
- 1993년-1999년 한라시멘트 기술연구소  
주임연구원
- 2000년-현재. 요업기술원 선임연구원

### ●● 정석조



- 2004년. 홍익대 재료공학부. 공학사
- 2004년-현재. 요업기술원 연구원
- 2005년-현재. 한양대학교 신소재공학과  
(석사과정)