

# 저탄소 지오폐리머 콘크리트 기술

## Low Carbon, Geopolymer Concrete Technology



고정원\*

Jeong Won Ko

### 1. 서론

최근 지구온난화가 급속하게 진행됨으로 인하여 CO<sub>2</sub> 배출량 저감은 각 산업에 있어서 중요한 테마로 인식되고 있다. 국내 CO<sub>2</sub> 총 배출량은 2009년 기준 52,870만톤으로 전 세계 8위(EIA, 미국에너지정보청)에 이르고 있으며, 특히 시멘트산업에서 배출되는 CO<sub>2</sub> 량은 국내 CO<sub>2</sub> 총 배출량의 약 6~8%를 차지하고 있다. 시멘트 1톤 생산시 0.7~0.9톤의 CO<sub>2</sub> 가 발생되므로, 국내 시멘트 생산량이 연간 5,000~5,500만톤임을 감안하면 건설산업에서의 CO<sub>2</sub> 저감을 확보하기 위해서는 무엇보다도 콘크리트 적용에 있어서 시멘트 사용량을 저감하는 것이 매우 유효한 방법임에 틀림없다.

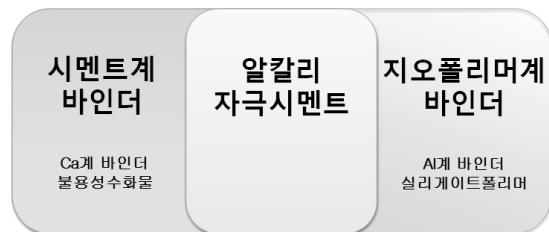
국내 시멘트 산업에서도 범지구적인 기후변화 대응 노력에 동참하고 녹색성장을 통한 저탄소 사회구현을 위하여 업계 자발적으로 지식경제부와 협약을 맺어 2015년까지 이산화탄소 배출량을 2005년도 대비 5% 감축하기로 결의하여 시멘트 톤당 40kg-CO<sub>2</sub>를 감축하기로 하고 있으며, 「자원의 절약과 재활용 촉진에 관한 법률」에 의거 「철강슬래그 및 석탄재배출사업자의 재활용지침(환경부, 지식경제부 고시)」에서 슬래그의 목표재활용은 95%, 석탄재는 75%로 규정, 슬래그와 석탄재의 재활용 촉진 의무화를 추진하고 있는 실정이다. 또한, 이를 바탕으로 최근 국

내외적으로 시멘트저감형 저탄소 콘크리트의 개발에 관심을 가지고 많은 연구자들이 심도있는 연구를 추진하고 있다.

본고에서는 기존의 포틀랜드시멘트와 포틀랜드시멘트 대체 재료로서의 지오폐리머의 차이점을 검토하고 지오폐리머의 활용성을 재고하기 위하여 일본 야마구치대학의 이케다(池田 政) 교수가 저술한 저탄소 지오폐리머 기술에 대하여 소개하고자 한다.

### 2. 시멘트와 지오폐리머의 차이점

시멘트와 지오폐리머는 모두 무기질 바인더이나, 바인더를 구성하고 있는 재료의 특성에 따라서 다음과 같이 구분할 수 있다. 즉, 시멘트는 칼슘계 바인더이며, 지오폐리머는 알루미늄계 바인더라고 할 수 있다. 한편, [그림 1]에 나타낸 바와 같이 다소 중첩되는 부분이 있으며, 이 부분에 대해서는 알칼리자극 시멘트로 구분할 수 있다.



[그림 1] 시멘트와 지오폐리머의 차이점

\* (주)대우건설기술연구원, 선임연구원  
Daewoo Institute of Construction Technology(DICT)  
E-mail : jwko@dwconst.co.kr

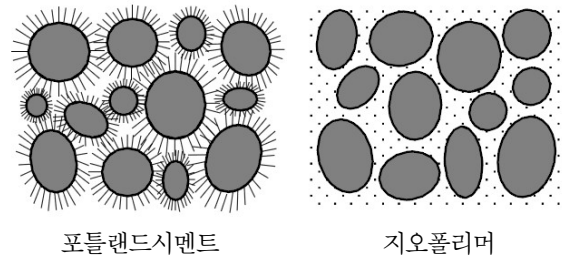
건설산업에 폭넓게 사용되고 있는 시멘트는 여러 종류가 있으나, 현재 시멘트산업에서 생산되고 있는 시멘트는 공식적으로 포틀랜드시멘트로 명하고 있으며, 1824년 Josef Aspdin<sup>1)</sup>의 특허에 의해 점차 개선되어 180년간 생산이 계속되고 있다. 시멘트 생산에 의해 전세계의 CO<sub>2</sub> 발생 비율은 전체 산업에서 발생하는 CO<sub>2</sub> 발생량의 약 7%로 점유율은 그다지 크지 않으나, 절대량은 21 억톤의 CO<sub>2</sub> 로서 방대한 량이다. 1 톤의 시멘트 클링커를 소성하기 위하여 0.7 ~ 0.9 톤의 CO<sub>2</sub> 가 발생하여 회수되지 않고 대기 중에 방출되어 온난화 가속화에 큰 영향을 미치고 있다. 시멘트의 문제요소는 CO<sub>2</sub> 의 화석이라 할 수 있는 석회석(CaCO<sub>3</sub>)을 대량으로 사용하는 것이며, 더욱이 1,450°C 의 초고온에서 소성하기 때문에 화석연료를 대량으로 사용하는 것에 있다.

한편, 지오폴리머의 경우, 석회석에 의존하지 않으며, 원료인 몰류리(Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>)를 생산하는 과정에서 소다회(Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>)가 필요하나, 그 사용량이 적고, 규사와 함께 1,250°C 정도의 비교적 경제적인 온도에서 용융되기 때문에 연료에서 발생하는 CO<sub>2</sub> 도 비교적 적다. 또한, 필러로 활용되는 카울린분말을 활성화하기 위해 750°C 전후에서 소성할 필요가 있으나, 이 역시 온도가 낮기 때문에 이 단계에서 발생하는 CO<sub>2</sub> 가 적다. 이로 인하여, 지오폴리머가 시멘트에 비해 80 ~ 85%의 CO<sub>2</sub> 발생량이 적은 것으로 알려져 있다.

### 3. 경화기구에 대하여

포틀랜드시멘트는 4 종류의 클링커 광물로 구성된다. 이들은 독특한 기호로 표시되며, C<sub>3</sub>S, C<sub>2</sub>S, C<sub>3</sub>A, C<sub>4</sub>AF 로 표시한다. 여기서 C = CaO, S = SiO<sub>2</sub>, A = Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, F = Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 이다. C<sub>3</sub>S와 C<sub>2</sub>S는 물과 접하면 입자 표면에 C-S-H 라는 겔 형태의 수화생성물을 생성한다. 이 과정에서 C<sub>3</sub>S와 C<sub>2</sub>S 입자는 모두 용해되지 않으며, 그 표면부에 국한하여 물과 반응하는 반응영역을 형성한다. 이 반응영역의 외측에 겔 형태의 C-S-H 광물이 형성되며, 미세구조를 갖는 이 생성 조직은 동굴의 중유석과 같이 내부에 미세한 공극이 복잡하게 연결되어 있으며, 이 공극을 통해 석회(CaO) 및 실리카(SiO<sub>2</sub>) 등이 물과함께 반응하여 세공조직을 형성하는 과정을 갖는다. 즉, [그림 2]와 같이 입자표면에 침상형 돌기로 생성되는 에트링가이트(ettringite) 및 C-S-H 광물을 형성하게 된다.

C-S-H의 C/S 몰비는 평균적으로 1.3이지만, 생성조건에 따라 0.5 ~ 1.7 까지 변화한다.<sup>2)</sup> C-S-H의 형성에 기여하지 않는 석회분은 물에 용해되어 입자 주변에서 평면상의

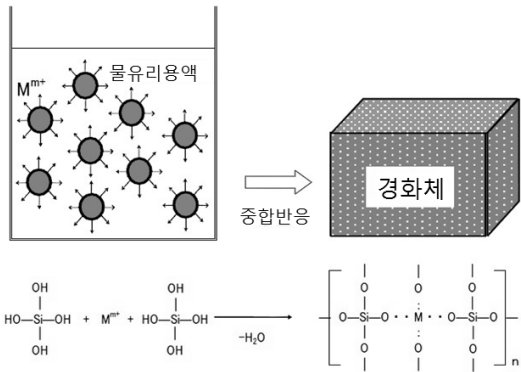


[그림 2] 포틀랜드시멘트 경화체와 지오폴리머 경화체의 미세조직 차이 개념도

포틀랜드아이트(portlandite), 즉 수산화칼슘(Ca(OH)<sub>2</sub>)으로 침전된다. 한편, C<sub>3</sub>A는 용해도가 높고 반응성이 풍부하기 때문에 완전히 용해되며, 물과 반응한 직후에 급격히 경화되어 비빔이 어려운 현상을 유발한다. 이를 방지하기 위하여 시멘트에 소량의 석고를 첨가함으로써 에트링가이트(ettringite) 등의 불용성 황산염이 먼저 생성된다. 그 후에 C<sub>4</sub>AH<sub>13</sub> 및 C<sub>2</sub>AH<sub>8</sub> 등의 알루미늄산칼슘수화물이 침전된다. C<sub>4</sub>AF는 빨리 용해하지 않고 서서히 물과 반응하여 겔 모양의 광물을 생성하지만, 함유량이 적어서 무시할 수 있다. 이상과 같이, 수화작용에 의해 사용된 물이 결정수로 흡수되기 때문에 분말의 시멘트가 응집하여 경화된다. 이러한 과정에서, 그림 2와 같이 주로 C-S-H의 작용에 의해 견고한 경화체가 된다.

지오폴리머의 경우는 이러한 점에서 상당히 다르게 나타난다. 필러라고 불리는 분말을 무기질의 부정형 겔에 경화시키는 구조이다. [그림 3]에 나타낸 바와 같이 필러라고 불리는 분말로부터 용출된 금속은 알칼리 성분을 포함하는 용액과 접하는 경우, 규산집합체를 가교하여 폴리머화 한다. 이 반응은 자연현상에서도 쉽게 찾아볼 수 있으며, 매립지의 마사토가 고화되거나, 유리창에 묻은 모래가 좀처럼 떨어지지 않는 것도 같은 이치이다.

지각의 퇴적암 생성기구가 바로 지오폴리머 반응으로서 지오폴리머의 어원도 이로부터 유래되었다. 시멘트의 경화는 물의 흡수반응이며, 지오폴리머의 경화는 물의 증발반응이기 때문에 원리상 양자는 구별된다. 따라서 지오폴리머의 경우는 우선 클링커를 소성하는 단계가 불필요하다. 그 대신에 필러라고 불리는 분말이 필요하다. 클링커 광물로부터 주로 칼슘이 용출하는 것과 유사하나, 지오폴리머의 경우는 주로 알루미늄이 용출된다. 카울린이라 불리는 점토광물을 소성하여 얻을 수 있는 탈수카울린, 즉 메타카울린은 이러한 용출이 현저한 광물이다. 이러한 용출이 비교적 높은 필러를 활성화필러라고 부른다.



[그림 3] 필러로부터 금속이온의 용출과 경화반응

반면, 석영 및 적철광 등은 용출이 거의 없으며, 이러한 분말을 불활성 필러라고 부른다.

지오폐리머는 규산집합체의 원료로서 일반적으로 알칼리 자극제가 필요하다. 알칼리규산염 유리는 깨진 파편형태를 띄기 때문에 깨트이라 불린다. 나트륨계와 칼륨계가 있으나, 나트륨계가 저렴하여 기초화학제품으로 대량 생산되고 있다. 깨트를 물에 녹이면 이른바 물유리가 된다. Joseph Davidovits<sup>5)</sup> 에 따르면 칼륨계가 고강도를 얻을 수 있지만, 가격 관계로 인하여 나트륨계 물유리를 이용하는 연구가 많이 행해지고 있다. 그러나 둘 사이의 기본원리는 같다. 물유리는 적당히 물을 희석하여 사용한다. 이것은 시멘트 경화에 이용하는 혼합수에 해당하지만, 이 물은 ‘모노머 (monomer)’ 라는 규산집합체를 포함하는 점이 다르다. 따라서 향후 도래할 미래는 시멘트의 세계로 부르기 보다는 폴리머의 세계, 무기질 플라스틱의 세계라고 할 수 있다.

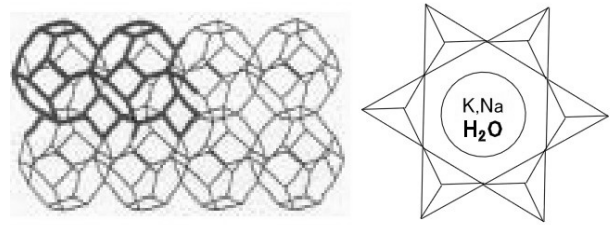
#### 4. 지오폐리머의 구조화학

[그림 4]에 나타낸 것과 같이, 필러로 불리는 분말이 규산폴리머의 바인더로 접촉되어 붙어있는 것이 지오폐리머 경화체의 모습이다. 그렇다면 그 바인더의 본질은 어떤 구조를 가지고 있는 것일까?

지오폐리머 바인더는 비정질의 겔이며, X 선을 사용할 수 없기 때문에, 고체 NMR 등을 이용하여 <sup>29</sup>Si 등의 스펙트럼을 관측하여 내부구조를 추정한다<sup>5)</sup>. 이에 따르면, [그림 4]와 같이 바인더 겔은 규산집합체 [SiO4] 6 고리를 형성하고 있다고 생각되고 있다. 이 6고리가 6개 모여 소다라이트와 같은 구조 또는 제올라이트와 같은 구조로 되어 있다고 추정되고 있다.

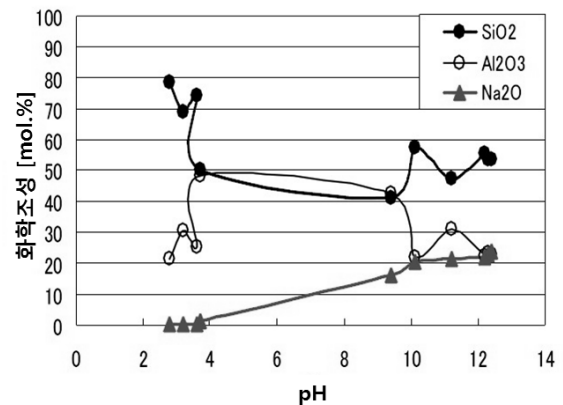
두 광물 모두 ‘박스와 고리’ 라는 3 차원의 틈새가 있고, 큰 K와 H<sub>2</sub>O 분자가 그 안에 수용된다. Na는 크기가

약간 작고, 따라서 4 고리 쪽이 유리하다고 생각되고 있다. 이상과 같이, 겔 구조는 정성적이기는 하나 점차 해명되고 있다.



[그림 4] 폴리머화 규산겔의 구조

[그림 5]에 나타낸 바와 같이 최근 연구<sup>6)</sup>에서는 규산겔 중의 나트륨량은 용액의 pH가 증가함에 따라 증가한다. 여기서 흥미로운 것은 실리카(SiO<sub>2</sub>)와 알루미늄(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)가 거울에 비춘 것처럼 반대 거동을 하는 것이다. 최근 칼륨에 대해서도 연구를 수행하였으나, 거의 유사한 결과를 얻을 수 있었다.

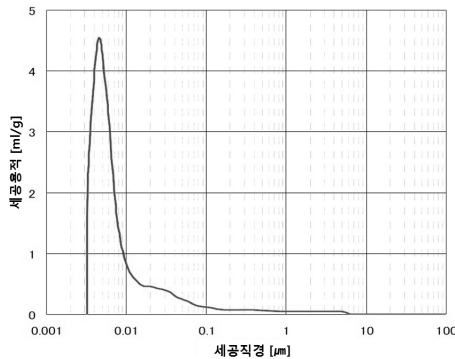


[그림 5] 규산겔 중의 실리카, 알루미늄, 나트륨의 거동

#### 5. 지오폐리머의 성능

지오폐리머에 사용되는 필러에는 활성필러와 불활성필러가 있다. 활성필러의 대표적인 메타카올린은 카올린을 소성하여 얻을 수 있다. 카올린 자원은 세계적으로 편중되어 있으며, 주요 산출국은 미국, 포르투갈, 뉴질랜드이다. 일본과 한국의 경우 산출량이 적다. 포르투갈에서는 건축물의 보수에 지오폐리머를 사용하는 경우가 많으며, 석재와 궁합이 잘 맞고, 색채가 유사하기 때문에 보수개소가 눈에 띄지 않으므로, 소위 패치워크로 보이지 않는 장점이 있다. 지오폐리머는 포틀랜드시멘트와 비해 내화성능이 우

수하며, 그 디자인과 불연성을 이용하여 이미 핀란드에서는 선박의 내장재에 사용되고 있다. 카올린자원이 없는 나라들은 대응으로 동일한 활성필러인 석탄회(플라이애시) 및 고로슬래그 등의 활용도를 높이기 위한 연구를 진행 중에 있다. 현재는 이러한 재료를 포틀랜드시멘트의 일부를 치환하여 폭넓게 사용되고 있다. 포틀랜드시멘트에 비하여 내구성이 우수하며, 알칼리골재반응, 황산염침식 등에 저항성이 높기 때문에 해양구조물 및 하수관거, 철도침목 등에 폭넓게 적용되고 있다.



[그림 6] 나노세공을 갖는 지오폴리머 특수배합의 세공경분포

특히, [그림 6]에서 알 수 있듯이 배합의 특성에 따라 10nm이하의 나노세공을 임의 분포시킴으로서 조습성능을 높일 수 있으며, 이 기술은 건축용 내장재 등에 적용되고 있다.

또한, 지오폴리머는 낮은 배합수를 이용함으로써 동일한 물결합재비의 포틀랜드시멘트에 비하여 워커빌리티 확보를 위한 추가적인 감수제의 사용이 불필요하며, 잉여수로 인한 건조수축균열 등을 억제할 수 있다. 또한, 낮은 수화열과 동결융해저항성에 유리하다. 단점으로 지적되고 있는 탄산화저항성의 경우, 고강도화를 통해서 이산화탄소 확산을 억제할 수 있다.

## 6. 맺음말

이상과 같이 지오폴리머 결합재는 많은 이점을 가지고 있으나, 보편적인 실용화를 위해서는 개선 및 보완이 필수적으로 요구된다.

즉, 알칼리자극제를 사용함으로써 강도발현에는 유리하나, 슬럼프로스가 크게 나타나며, 유동성 변화에 민감한 문제와 pH의 저하, 백화, 화학조성 및 양생조건에 민감하

게 반응하는 문제점을 가지고 있다. 따라서, 이러한 문제점들을 개선하고 보완하는 노력이 필요하다.

국내에서도 정부주도 건설기술혁신사업인 Green-up 30의 탄소저감형 건설재료 기술개발을 통하여 시멘트 저감형 고성능 콘크리트의 개발연구가 추진되고 있으며, 이를 계기로 지오폴리머 콘크리트 기술이 한층 발전될 것으로 기대된다.

## 참고문헌

1. R. H. Bogue, "The Chemistry of Portland Cement", pp.571, Reinhold Pub. New York, 1947.
2. T. Mitsuda, S. Kobayakawa and H. Toraya, Characterization of hydrothermally formed C-S-H, 8th Inter. Cong. Chem. Cem., Rio de Janeiro, vol, 3, 173-178, 1986.
3. 三国 彰, ジオポリマー-固化体に用いるフィラー物質の溶出特性に関する研究, 山口大学博士論文, pp.107, 2005.
4. 池田 攻, ジオポリマー-バインダーによる鉱物質粉体の常温固化と材料化、資源と素材, 114, 497-500, 1998.
5. J. Davidovits, Geopolymer chemistry tutorial, materials of tutorial, Saint Quentin, pp. 36, 2005.
6. T. Iwahiro, R. Komatsu and K. Ikeda, Chemical compositions of gels prepared from sodium metasilicate and aluminum nitrate solutions, Proc. Geopolymers 2002, 176-183, 2002.
7. T. Kihara, A. Mikuni, Y. Nakamura, R. Komatsu and K. Ikeda, Consolidation of pressurized fluidized bed combustion ash (PF-ash) by the geopolymer technique at ambient temperature, roc. CIMTEC 2002, Sci. New Tech. Silicate Ceramics, 163-168, 2003.