

염분의 결정화 현상이 석재 내구성에 끼치는 영향

김성수* · 박형동*

Effects of Salt Crystallization on Stone Durability

Sung-Soo Kim* and Hyeong-Dong Park*

ABSTRACT : The main objective of this study is to suggest a new assessment method of the influence of weathering due to salt crystallization on the engineering property of rock. For this purpose, various sources of salt and salt crystallization were investigated, and artificially accelerated weathering tests were carried out. In natural environment, weathering rate is very slow and weathering process involves complex mechanisms. Therefore artificial weathering test is essential for systematic analysis. Artificial weathering test is defined as test which controls weathering rate and agents by controlling artificial environmental condition. In this study, salt crystallization test was selected among various artificial weathering test methods, for its important role in weathering. Change of various stone properties were detected. The change of physical properties by salt crystallization were observed as follows: 72% in Brazilian tensile strength and 72% in Slake durability. These results explain the importance of salt crystallization in the mechanical behaviour and properties of stone.

서 론

석재는 인류역사의 초기부터 주거 건축용 재료로서, 또한 인간의 미적인 욕구를 표현하기 위한 재료로서 사용되어 왔다. 석재는 그 외관과 성질이 매우 독특하기 때문에, 가격이 싸고 우수한 물성을 가진 다른 재료가 많이 개발된 오늘날에도 여전히 다양한 용도로 사용되고 있다. 석재를 보다 잘 이용하고 장기간 가치를 유지하기 위해서는 원래 암석의 성질을 이해하는 것이 중요하다. 암석의 독특한 성질 중의 하나가 풍화이다. 금속, 플라스틱 등 다른 재료와는 달리 암석은 주변환경의 영향으로 풍화를 겪게 되며 이 과정에서 변색, 강도저하 등이 발생한다. 또한 대부분의 암석은 원래 구조적인 결함을 갖고 있고 이런 부분을 중심으로 풍화가 가속화되기도 한다. 풍화현상은 주로 장기간에 걸쳐 서서히 일어나기 때문에 그 심각성이 잘 인식되지 못하기도 한다. 그러나 근래의 산업화, 도시화로 인한 환경오염은 석재의 풍화현상을 급격히 가속화시키고 있어 고분화재, 건물외장재 등과 같이 오랜 시간

풍화현상을 겪었거나 외부환경에 노출되어 있는 석재에 대해서는 풍화에 대한 대책 마련이 필수적인 시점에 이르렀다.

본 연구의 목적은 석재의 풍화현상에 의한 공학적 물성 변화 연구의 체계적 방법과 기초데이터 구축에 있다. 이 연구를 통해 국내에 존재하는 수많은 석조문화재의 보존과 건축외장재로 사용되는 석재의 풍화방지에 유용한 결과를 도출하고자 한다. 특히 문헌연구를 통하여 그 영향력이 매우 강한 것으로 알려져 있으며 국내의 문화재 및 석재에 대한 연구에서도 그 영향이 발견되고 있는 (이상현, 1993) 염분의 영향에 대한 연구가 시급하다고 판단하여 이를 우선적으로 연구하였다.

본 연구는 (i) 염의 영향 중 가장 영향력이 크다고 판단되는 염의 결정화 현상에 관한 고찰, (ii) 염의 결정화현상이 석재에 미치는 영향에 대한 인공풍화 실험연구 등으로 구성되었다.

염의 결정화 현상

염은 해안지방에서는 해수의 분무에 의해서, 도시환경에서는 겨울철 제설제를 통해서 석재로 유입된다. 이 외에도 여러 유입경로를 가지고 있는 염분은 석재의 풍화에

* 서울대학교 지구환경시스템공학부 (School of Civil, Urban, and Geosystem Engineering, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea), E-mail: hpark@snu.ac.kr

있어 대단히 중요한 요소이다. 염분은 결정화에 따른 부피팽창, 수화에 따른 부피팽창, 암석과의 열팽창률의 차이, 삼투압 등의 과정으로 석재에 영향을 끼치게 된다. 이런 메카니즘들에 의해 나타나는 응력이 대단히 크고, 대부분의 경우 온도변화와 수분의 영향을 수반하기 때문에 석재의 경제적 가치에 영향을 끼치는 것으로 알려지고 있다 (Winkler, 1994).

석재로 침투하는 염의 종류에는 석재 자체의 성분, 지하수에 용해된 형태, 해수 분무, 제설·제빙제, 석재표면 처리제 등이 있다. 석재 내부에 염이 존재하는 형태로는, 황철석의 풍화에 의해 황산염이 생성되는 것이 대표적인 예이다. 황산염과 암석의 Ca, Na, Mg 등이 결합하여 표면에 하얀색의 결정을 형성(efflorescence)하거나 석재 내부에서 결정화한다. 황철석의 산화에 의해 발생한 철이온은 석재의 표면으로 이동하여 갈색의 철수산화물을 형성한다. 지하수의 상승은 염을 공급하는 주요한 경로이며 주요한 것으로는 Na, Mg, Ca, P의 chloride, sulfate, nitrate 등이 있다. 유기 오염물질에 의해 phosphate와 nitrate가 첨가되기도 한다. 해수 분무에 의해 NaCl을 비롯한 바닷물 속에 포함된 염이 이동하며 해안에서 320 km 까지 이동한다 (Winkler, 1994). 최근에는 제설제로 사용되는 NaCl이나 CaCl₂가 도로변의 석재 하부에 심각한 피해를 주고 있다. 염에 의한 석재풍화 연구는 예전에는 역사적인 문화유산을 많이 갖고 있는 국가들을 중심으로 이루어져 왔으나 최근에는 제설제의 피해 문제 때문에 미국, 캐나다 등의 국가에서도 활발한 연구가 행해지고 있다 (Hale *et al.*, 1998, Winkler, 1994). 석재 강화제나 피복제 등의 처리제에서 알칼리 금속이 석재로 공급되는 경우가 있다. 특히 Na, K 물유리(waterglass)의 경우, Na, K 등이 sulfate나 carbonate와 결합하여 수용성 염을 형성하여 석재 내부로 이동한다.

석재로 침투한 염은 그 용해도의 차이와 주변환경의 영향으로 석재의 표면에서, 또는 내부로 이동하여 결정화하게 된다. 전자를 efflorescence라고 하고 표면 바로 안쪽에서 결정화하는 현상을 subflorescence라고 한다. 이 subflorescence 현상에 의해 석재의 표면은 그 지지력을 잃고 떨어져 나가게 된다.

Correns (1949)는 염의 결정성장에 따른 압력을 나타내는 식을 다음과 같이 제안했다.

$$P = RT/V_s \times \ln C/C_s,$$

where, P : pressure by crystal growth (atm)

R : gas constant of the ideal gas law (0.082 l-atm per mol degree)

T : temperature (K)

V_s : molecular volume of the solid salt

C : actual concentration of the solute during crystallization

C_s : concentration of the solute at saturation

이렇게 하여 계산된 결정화 압력은 최대 200 MPa이 넘으며 신선한 화강암의 인장강도가 10 MPa 내외임을 고려하면 염의 결정화 현상이 암석의 균열을 생성할 수 있음을 알 수 있다.

풍화에 의한 석재물성의 변화

암석의 풍화는 그 원인이 물리적 작용이건 화학적 작용이건 혹은 생물학적인 작용이건 간에 암석의 공학적 성질의 저하를 야기시킨다. 현재 풍화의 정도를 나타내는 기준으로는 국제암반공학회(ISRM)에서 제안한 6단계의 기준이 널리 사용되고 있다 (ISRM, 1981). 이는 다분히 정성적인 기준이지만 암석의 공학적 물성치와 비교적 잘 대응되는 등급이다. 6단계는 F (Fresh), SW (Slightly Weathered), MW (Moderately Weathered), HW (Highly Weathered), CW (Completely Weathered), RS (Residual Soil)로 나누어진다.

암석의 풍화에 따른 물성치의 변화는 밀도, 공극률, 탄성과 전달속도, 압축강도, 인장강도, Slake durability 등 여러가지로 확인할 수 있다. 이 중에서 풍화에 의한 입자간의 결합력의 약화와 미세균열의 생성 및 발달이라는 관점을 고려할 때 탄성과 전달속도와 인장강도가 유용한 지시인자가 될 수 있다. 하지만 풍화의 정도가 심할 경우 암석 표면이 다분히 불규칙적인 양상을 띄게 되어 물성측정이 어려운 경우도 있다. 탄성과 전달속도의 경우 측정시에 transducer의 밀착에 어려움이 따르기도 하며 압축 및 인장강도 측정시에는 철곡(凸曲)부분에 응력집중 현상이 발생하기도 한다 (김성수, 1999). 암석의 인장강도 측정에는 Brazilian tensile strength test를 이용하는 것이 효율적이다. Brazilian test는 코어시료의 옆면에 압축력을 가할 경우 내부에서는 인장응력이 발생한다는 원리를 이용한 실험법으로서, 측정하기 까다로운 암석의 인장강도를 편리하게 측정할 수 있고 또한 비교적 신뢰성이 높기 때문에 널리 사용되고 있다. 입자가 떨어져 나가는 과정을 확인한다는 관점에서 Slake durability test, 공극률과 공극의 크기분포, 또는 보다 간단히 측정이 가능한 밀도도 좋은 지시자가 될 수 있다. Slake durability test의 경우 기준에는 헐암(shale)이나 점토암(claystone)과 같이 물

을 만났을 때 입자간의 결합력이 현저히 떨어지는 암석의 내구성 평가에 주로 사용되어 왔으나 (Franklin, Chandra, 1972) 풍화의 원래 의미를 생각할 때 다른 암종에도 내구성 평가를 위한 방법으로 효율적으로 사용할 수 있을 것으로 기대된다.

인공풍화 실험조건의 설정

인공풍화실험이란 실제 자연환경에서 매우 느린 속도와 복잡한 요인에 의해 발생하는 암석의 풍화현상을 연구하기 위해 풍화의 속도와 요인을 인위적으로 제어하는 실험을 뜻한다. 인공풍화실험에는 극단적인 환경을 인공적으로 조성하여 풍화현상을 발생시킴으로써 풍화를 가속화시키거나 풍화에 의한 석재의 성질 변화를 정량적으로 확인해 나가는 작업이 포함된다. 암석 풍화에 관한 연구에서는 특정 풍화요소가 풍화에 미치는 영향의 확인이 필요한데 실제 자연환경에서 발생하는 풍화는 여러 요인이 복합적으로 작용하고 있기 때문에 풍화요인을 제어하는 인공적인 환경의 조성이 필요하다. 또한 자연환경에서의 풍화현상의 시간 스케일은 너무나 커서 연구가 거의 불가능하므로 풍화의 가속화가 반드시 필요하다. 이러한 인공풍화실험에서 가장 중요한 점은 실험환경과 실제환경과의 관계, 그리고 실험과정에서 발생하는 풍화현상과 실제환경에서 발생하는 풍화와의 관계를 찾는 것이다.

본 연구에서 설정한 풍화요인인 염의 결정화 실험은 Na_2SO_4 , MgSO_4 , $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (gypsum), K_2SO_4 , NaCl 등 자연에 존재하는 여러가지 염의 용액에 시료를 침수시키고 건조시키는 과정을 반복하여 석재공극 내에서 염의 결정이 생기도록 유도하는 것이다. 이 때, 사용하는 염의 종류와 농도, 침수와 건조 시간, 각 사이클마다 이전에 생겼던 염의 결정의 제거여부 등의 변수가 존재한다. 염의 종류는 연구대상이 되는 석재에 영향을 미치는 염의 종류가 무엇인지를 살펴 결정하여야 한다. 즉 연구의 목적과 대상에 따라 그 종류를 다르게 설정하여야 한다. 가장 일반적인 것은 NaCl 로서 바다와 인접한 지역에서는 해수분무에 의하여, 도시환경에서는 제설제로 사용되어 석재에 침투한다. 사용되는 염의 농도는 특정한 기준이 정해져 있지 않지만 크게 비포화용액과 포화용액으로 구분해 볼 수 있다. 비포화용액은 실제자연환경과 상대적으로 가깝지만 풍화의 가속화라는 측면에서는 포화용액의 사용이 바람직하다. 각 사이클에서 이전에 생성된 염의 결정의 제거여부도 중요한 문제이다. 제거하지 않을 경우에는 생성된 염분 결정을 계속적으로 성장시킴으로써 풍화 가속화 효과를 극대화할 수 있지만 풍화도 평가를 위한 물성

측정의 정확도를 떨어뜨리며 실제 자연환경의 모사라는 점에서도 불합리한 측면이 있다.

화강암에 대한 염분 결정화의 영향 확인

염분의 결정화 현상이 과연 외국의 연구사례에서 추정되고 있는 바와 같이 실제 강도와 같은 석재의 공학적 특성에 영향을 주는지를 확인하기 위한 실험을 행하였다.

시료는 대전 신대동 지역 절개사면에서 채취한 중간풍화 등급의 화강암으로 인장강도 측정을 위한 Brazilian test에 적합하도록 직경 50 mm, 두께 25 mm의 코어형태로 가공되었다. 또한 단기간의 인공풍화실험의 영향이 잘 나타날 수 있도록 신선한 (Fresh) 화강암이 아닌 중간풍화 등급 (Moderately weathered) 정도의 시료를 선택하였다. 이는 대부분의 석조문화재가 풍화된 점을 고려할 때 효과적인 선택으로 판단된다.

염분 결정화에 의한 풍화가속화실험은 24시간 과정, 즉 1) 포화염분용액 침수 15시간, 2) 오븐건조 3시간, 3) 대기건조 1시간, 4) 포화염분용액 침수 2시간, 5) 오븐건조 3시간으로 구성하였다. 염분 결정화 실험에 대한 사이클 구성은 아직 국제적인 연구에서도 표준적인 방법으로 제시된 것이 없으며 연구자들이 실험의 목적과 실험 여건에 따라 사이클을 구성하고 있는 실정이다. 위 실험 사이클은 시료가 염수용액에 충분히 포화되고 또한 충분히 건조될 수 있는 시간을 최대한 제공하면서 현실적으로 정기적인 실험을 반복할 수 있도록 24시간의 반복주기를 구성한 것이다. 대기건조 1시간을 포함시킨 것은 건조과정에서 105°C로 가열된 시료를 실온의 염수에 넣을 경우 급작스러운 온도변화로 인한 균열생성의 가능성을 줄이기 위함이다. 염의 종류는 해수 중의 염의 대부분을 차지하고 겨울철 제설제로도 사용되어 온 NaCl 을 사용하였다. 생성된 염분 결정을 제거하지 않고 계속적으로 성장시키기 위해 과포화된 염수용액을 사용하였다 (Park *et al*, 1998).

시료는 각 2개를 한 세트로 하여 위의 인공풍화과정을 거치지 않은 시료, 10일간 거친 시료 그리고 30일간 거친 시료로 구분되었다. 시료의 개수가 적은 이유는 유사한 등급으로 중간정도 풍화된 시추코어를 회수하기가 실제 어렵기 때문이다. 10일 경과후 시료 표면의 장석류의 일부가 떨어져 나가는 현상이 관찰되어 이 시점을 풍화의 한 단계로 파악하였다. 또한 30일 경과후에는 시료의 많은 범위가 염분결정화에 따른 풍화의 영향으로 떨어져 나가는 관계로 더 이상의 가속화는 물성측정을 어렵게 할 것으로 판단되었다.

물성변화 측정 및 현미경관찰

준비된 시료에 대하여 Brazilian tensile strength test를 통해 인장강도를 측정하였으며 슬레이크 내구성 시험법 (slake durability test)을 통해 풍화내도를 측정하였다.

각 경과일수에 대해 2개씩 할당된 시료에 대해 인장강도를 측정하였다 (Table 1). 측정 결과 평균치를 통해 볼 때 10일 경과 후에는 원 강도의 68%, 30일 경과 후에는 원 강도의 28% 정도의 값을 나타내어 염분 결정화 작용이 공학적 내구성에 심각한 영향을 주는 것으로 관찰되었다 (Fig. 1).

동일한 인공풍화실험 과정을 거친 시료에 대해 Slake durability test를 실시하였다. 원래 이 시험은 혈암(shale)이나 점토암(claystone)과 같이 물을 만났을 때 입자간의 결합력이 현저히 떨어지는 암석의 내구성 평가에 주로 사용되어 왔다. 하지만 실험법이 덩어리로 뭉쳐져 있던 암석이 개개 입자의 모양으로 분해되어 가는 과정이라는 풍화의 원래 의미와 잘 부합된다. 따라서 다른 암종의 현저암반

Table 1. Results of the Brazilian tests on the artificially weathered granite after the salt crystallization & heating-cooling cycles (unit : MPa).

	0 days	10 days	30 days
BTS (1)	4.49	2.85	1.57
BTS (2)	4.35	3.16	0.91
BTS (ave.)*	4.42	3.01	1.24
BTS (%)	100	68	28

* BTS (ave.)=[BTS (1)+BTS (2)]/2.

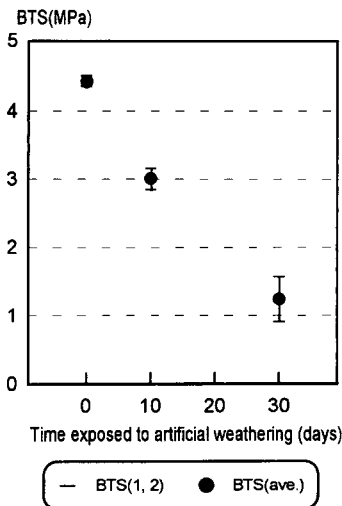


Fig. 1. Changes of the Brazilian tensile strength with the salt crystallization cycles.

풍화등급 판정에도 사용된 적이 있어 (Lee, Freitas, 1988) 인공풍화에 대한 내구성 평가를 위한 효율적인 방법으로 사용할 수 있을 것으로 기대되어 본 실험을 하게 되었다. Franklin과 Chandra의 연구 (1972)에서도 합리적인 시료의 형태와 크기를 선정하기 위한 실험에서 화강암을 시료로 사용하였기 때문에 본 실험법의 적용은 충분히 타당성이 있는 것으로 판단된다. 실험방법은 표준화된 Slake durability test method (Franklin, Chandra, 1972)를 따랐으며 시험에 투입하기 전에 시료를 다량의 증류수에 충분한 시간 침수시킴으로써 시료 내부 및 표면에 존재하는 염분을 제거하여 염의 용해로 인해 발생하는 증량변화에 의한 오차를 없애고자 하였다.

실험결과는 Table 2와 Fig. 2와 같다. 이를 보면 Slake durability가 매우 높던 원래 시료가 염분 결정화의 영향

Table 2. Results from slake durability test.

	% Retained after one 10-minute Cycle (Normalized to dry weight)	% Retained after two 10-minute Cycle (Normalized to dry weight)
Never exposed to the artificial weathering	99.2	98.9
Undergone a 10 day repeated cycles of weathering	60.3	43.5
Undergone a 30 day repeated cycles of weathering	29.7	27.2

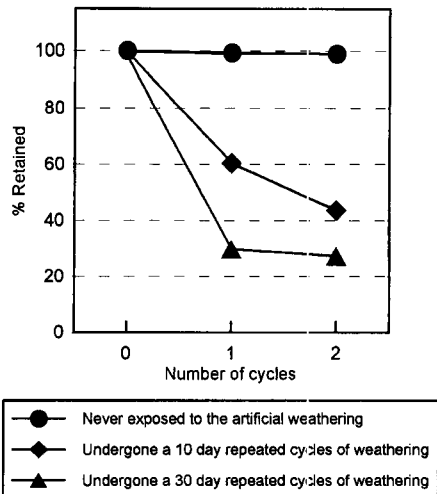


Fig. 2. Changes of slake durability after accelerated weathering by salt crystallization.

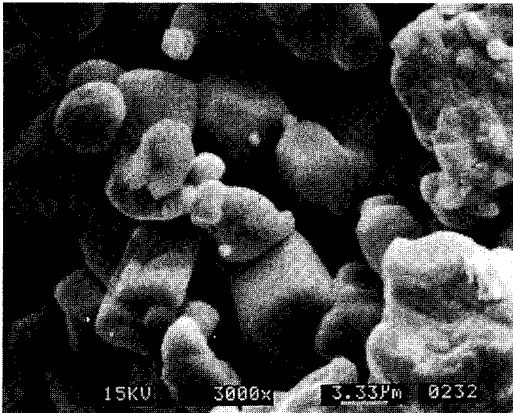


Fig. 3. Scanning electron micrograph image showing the loosening of mineral grains due to salt crystallization.

으로 내구성이 극히 저하된 것을 알 수 있다. 30일간의 인공풍화실험과정을 거친 시료의 경우 첫 번째 사이클을 거친 후에 매우 큰 중량저하가 있었으며 두 번째 사이클을 거치는 과정에서는 큰 변화가 없는 것을 볼 수 있는데, 이는 이미 풍화의 정도가 매우 심하여 첫 번째 사이클에서 이미 풍화된 대부분의 부분들이 체를 빠져나갔으며, 남아 있는 것들은 입경이 크고 풍화에 매우 강한 석영입자 등이었기 때문에 판단된다. 원래 혈암(shale)이나 점토암(claystone) 등에 적용하던 실험법을 구성광물의 입도가 상대적으로 큰 화강암에 적용했기 때문에 발생한 문제라 판단된다.

30일간 인공풍화실험을 거친 시료의 표면을 전자현미경으로 관찰하였다 (Fig. 3). 많은 입자가 탈락되고 균열이 생성된 것을 확인할 수 있다.

결론 및 제안

이상과 같이 살펴본 바에 따르면 다음과 같은 결론과 제안을 도출할 수 있다.

첫째, 자연적인 풍화요인 중 석재의 공학적 특성에 큰 영향을 주는 요인 중 하나인 염분의 결정화는 실험실에서 인공적으로 모사하여 물성치의 변화를 측정하기에 용이한 것으로 나타나 본 연구의 인공풍화 가속화실험의 조절 인자로 쓰이게 되었다. 대전지역 화강암에 대한 풍화가속 실험 결과 인장강도와 Slake durability가 크게 저하되는 것으로 나타났다. 인장강도의 경우 본 연구에서 채택한 반복주기를 10일 경과한 후에는 원 강도의 68%, 30일 경과한 후에는 28%를 나타내어 염분의 결정화과정이 석재의 인장강도에 큰 영향을 끼침을 알 수 있었다. Slake

durability의 경우 동일한 반복주기를 10일간 거친 시료에서는 최대 55%, 30일간 거친 시료에서는 최대 72%의 변화를 확인하여 염의 결정화가 석재의 내구성에도 심각한 영향을 끼침을 알 수 있었다.

둘째, 향후 연구에서는 국내 석재로 쓰이는 주요 암종에 대한 보다 체계적인 연구방법의 정립과 국내의 석재에 대한 각종 데이터의 축적이 이루어져야 한다. 다양한 실험법과 암종에 대한 인공풍화실험의 축적은 국내의 건설현장에서 사용되는 각종 석재의 내구성 향상을 위한 연구에 중요한 자료로 쓰일 것으로 판단된다.

사 사

본 연구는 한국과학재단 목적기초연구(971-0406-015-2) 지원으로 수행되었다.

참고문헌

김성수 (1999) 인공풍화실험을 이용한 석재의 공학적 내구성 평가, 서울대학교 대학원, 석사학위 논문, 84p.
 이상현 (1993) 석조문화재의 보존에 관한 지질학적 연구, 문화재 연구소, 85p.
 Correns, C.W. (1949) Growth and dissolution of crystals under linear pressure, Discussions of the Faraday Soc 5, p. 267-271.
 Franklin, J.A. and Chandra, R. (1972) The slake durability index, Int. Jour. Rock Mech. Min. Sci. 9, p. 325-342.
 Hale, P.A. and Shakoor, A. (1998) A laboratory investigation of the effects of climatic changes on unconfined compressive strength of selected sandstones, Proc. of 8th Congress of the International Association for Engineering geology and the Environment, Vol. 4, p. 2859-2867.
 ISRM (International Society for Rock Mechanics) (1981) Rock characterisation testing and monitoring: In Brown, E.T. (ed.) ISRM Suggested Methods, Pergamon Press.
 Lee, S.G. and de Freitas, M.H. (1988) Quantitative definition of highly weathered granite using the slake durability test, Gotechnique, The Institution of Civil Engineers, London, 38(4), p. 635-640.
 Park, H.D., Kim, S.S. and Chon, H.T. (1998) Durability of ornamental stone exposed to various weathering environments in Korea, Proc. of 8th Congress of the International Association for Engineering geology and the Environment, Vol. 4, p. 2953-2955.
 Simon, S. and Snelthage, R. (1993) The first stages of marble weathering, preliminary results after short-term exposure of nine months, In Thiel, M.J. (ed.) Conservation of Stone and Other Material, Proc. Intn. RILEM/UNESCO Cong., E & FN SPON, London, p. 51-58.
 Warscheid, T., Becker, T.W., Braams, J., Gehrman, C., Krumbein, W.E., Petersen, K. and Bruggerhoff, S.

(1993) Studies on the temporal development of microbial infection of different types of sedimentary rocks and its effect on the alteration of the physico-chemical properties in building materials, In Thiel, M. J. (ed.) Conservation of Stone and Other Material, Proc. Intn. RILEM/UNESCO Cong., E & FN SPON,

London, p. 303-310.

Winkler, E.M., 1994, Stone in architecture, 3rd ed., Springer-Verlag, New York, 315p.

1999년 1월 11일 원고접수, 1999년 2월 12일 게재승인.