Journal of the Korean Crystal Growth and Crystal Technology
Vol. 19, No. 1 (2009) 48-53

Dependence of physical properties of artificial lightweight aggregates upon a flux and a bloating agent addition

Seunggu Kang†

Department of Materials Engineering, Kyonggi University, Suwon 443-760, Korea

(Received December 18, 2008)
(Accepted January 5, 2009)

Abstract The effect of bloating and fluxing agent on the microstructure and physical properties were studied in manufacturing the artificial lightweight aggregates of bulk density below 1 using clay and stone sludge. In case of the aggregates added only with bloating agent, the bulk density and water absorption were 0.5~1.0 and 41~110 % respectively but the microstucture was not uniform with a rough appearance. For the aggregates added with a fluxing agent and one bloating agent, a part of shell was lost due to explosion of specimen caused by over-bloating during a sintering. The mixed addition of bloating agents with vacuum oil, carbon and Fe_2O_3 made the microstructure homogeneous by generating an uniform black core and shell structure. The aggregates added with mixed agents and sintered at 1200°C showed the bulk density 67 % lower and water absorption 48 times higher than those of the specimen with no additives. In this study, the artificial lightweight aggregates showing the bulk density of 0.5~1.0 and water absorption of 50~125 % could be fabricated to apply to various fields.

Key words Artificial lightweight aggregate, Bloating, Flux, Shell, Black core, Bulk density, Water absorption

인공경량골재 특성의 발포제 및 융제 첨가 의존성

강승구*

경기대학교 재료공학과, 수원, 442-760

(2008년 12월 18일 접수)
(2009년 1월 5일 심사완료)

요 약 점토와 석분오니로 비중이 1 이하인 인공경량골재를 제조할 때 발포제와 융제의 종류 및 소성온도가 미세구조, 부피 비중 그리고 흡수율에 미치는 영향을 분석하였다. 한 종류의 기름 발포제를 첨가한 경우 부피 비중 0.5~1.0, 흡수율 41~110 % 범위의 다공성 인공경량골재 제조가 가능하였으나 골재 외형이 거칠고 미세구조가 불균일하였다. 융제 및 발포제가 각각 한 종류씩만 첨가된 골재는 소성 중 시편이 폭발하여 표피층(shell)의 일부가 소실되었다. 발포제로서 진공오일 외에 Fe_2O_3와 탄소를 복합 첨가할 경우 black core와 shell 구조가 잘 형성되어 균일한 미세구조를 나타내었다. 융제 및 발포제가 복합적으로 첨가된 1200°C 소성체의 경우, 점토 및 석분오니로만 제조된 시편에 비해 부피비중이 67 % 줄고 흡수율은 48배 증가하여 우수한 발포특성을 보였다. 본 연구에서 제조된 복합 첨가 계열 시편은 부피비중 0.5~1.0, 흡수율 50~125 %의 다양한 물성을 나타냈으며, 따라서 각종 분야에 적용할 수 있을 것으로 생각된다.

1. 서 론

인공경량골재는 자연골재에 비해 미세구조 및 물성을 다양하게 변화시킬 수 있어 경량콘크리트 구조물, 경량콘크리트 패널, 방음벽, 층간 소음재, 단열재, 원예재료 등의 분야에 적용 가능성이 높다. 이에 따라 인공경량골재 제조에 관한 연구가 활발히 진행되어 왔으며, 일부 결과는 실용화되어 건축 및 토목 현장에서 사용되고 있다 [1, 2].

발포(bloating)된 세라믹스를 얻기 위해서는 소성과정에서 많은 양의 가스가 발생됨과 동시에 점성 액상이 형성되어 시편 전체가 열가소성(pyroplasticity)상태가 되어야 한다[3]. 점토에는 약간의 1족 및 2족 산화물 즉 융제가 함유되어 있고, 또한 황화물, 결정수, 유기물, 탄산염 등 가스를 형성하는 성분도 일부 포함되어 있지만 경량골재를 제조하기에는 충분하지 않다. 따라서 점토를 이용하여 경량특성의 골재를 제조하기 위해서는 가스를 발생시키는 성분과 액상을 형성시키는 성분 첨가가 필수

*Corresponding author
Tel: +82-31-249-9767
Fax: +82-31-244-8241
E-mail: sgkang@kgu.ac.kr

적이다[4]. 특히 점토 일부를 무기계 폐분진으로 대체하여 경량골재를 제조할 경우 일반적으로 기존의 공정에 비해 까다롭기 때문에 차별화된 공정 연구가 필요하다[4, 5].

본 연구에서는 무기계 폐분진 중 우리나라에서 연간 발생량이 약 100만 톤인 석분오니를 점토에 혼합하여 인공 경량골재를 제조함에 있어, 발포제와 융제를 단독 또는 복합적으로 첨가하여 각 성분이 소성된 골재의 물성에 미치는 영향을 고찰하였다. 또한 이에 따른 미세구조 변화를 측정된 부피비중 및 흡수율 값과 연관시켜 분석함으로서, 우수한 물성 및 균일한 미세구조를 갖는 인공경량골재 제조 조건을 연구하였다.

2. 실험 방법

본 연구의 주원료인 점토와 석분오니는 각각 충남 홍성군 소재 'C' 사의 점토벽돌 원료와 경기도 화성시 소재 'S' 석산에서 발생되는 석분오니를 사용하였다. 석분오니의 경우(Table 1) 소성 시 융제로 작용하는 알카리(1족) 산화물과 알카리토류(2족) 산화물들이 각각 9.03 wt%와 3.01 wt% 포함되어 있다.

인공경량골재 소성 시 액상을 형성하기 위해 첨가된 융제로는 물유리(Na_2SiO_3, Daejung, Korea), 장석(Table 1), Na_2CO_3(99 %, Duksan, Korea)를 사용하였다. 장석의 경우 1족 및 2족 산화물 성분이 8.79 % 포함되어 있다. 점토 소성 중 가스를 발생하는 반응은 여러 가지가 있으나 본 연구에서는 탄소화합물의 휘발(200~300°C) 및 연소반응(700°C 이상), 탄산염(carbonate)의 분해 반응(850°C 이상) 그리고 Fe_2O_3의 환원반응(1100°C 이상)을 이용하기로 하고, 발포제로서 콩기름(J사, Korea), 진공오일(L사, Korea), 벙커C유(L사, Korea), carbon black (C, Columbia Chem., USA) 그리고 Fe_2O_3(95 %, Shinyo, Japan)를 사용하였다.

여러 종류의 인공경량골재 배합비를 Table 2에 나타내었다. 본 연구에서는 발포제(bloating agent)만 첨가하여 제조된 인공경량골재를 B 계열, 융제(fluxing agent)의 효과를 보기위해 제조된 것을 F 계열, 그리고 발포제와 융제가 복합(complex) 첨가된 것을 C 계열 골재라고 명명하기로 한다.

인공경량골재 제조공정은 먼저 각 원료를 Table 2에 나타낸 배합비에 따라 칭량한 후 볼밀을 이용하여 1시간 혼합하였다. 혼합된 원료에 증류수 20 wt% 첨가하여 10분간 반죽 한 후 지름 8 ± 1 mm 크기의 구형 골재를 성형하였다. 성형된 골재는 120°C/48 h 동안 건조 후, 박스형 전기로에서 1150°C 및 1200°C에서 10분간 직화 소성하였다. 원료의 조성분석은 XRF(ZSX-100e, Rigaku, Japan)를, 인공경량골재 단면 관찰은 광학현미경(DCS-

Table 1
Chemical compositions of raw materials (wt%)

	Ig. loss	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	CaO	MgO	Na_2O	K_2O	TiO_2	P_2O_5	MnO
Clay	11.03	57.86	19.08	7.07	0.20	1.04	0.09	2.54	0.92	0.17	-
Stone sludge	3.58	66.79	14.90	2.30	1.96	1.05	3.81	5.22	0.28	0.11	-
Feldspar	0.64	74.41	15.10	0.49	0.33	0.03	4.56	4.23	0.02	0.02	0.17

Table 2
Compositions of artificial aggregates (wt%)

	Base material		Bloating agent			Fluxing agent				
Specimen I.D.	Clay	SS*	Soybean oil	Vacuum oil	Bunker-C oil	Fe_2O_3	C	Water glass	Feldspar	Na_2CO_3
B-1**	60	39	1							
B-2	60	39		1						
B-3	60	39			1					
F-1+	60	36	1					3		
F-2	60	36	1						3	
F-3	60	36	1							3
C-1++	60	35		1		1	0.5		2.5	
C-2	60	33		2		2	0.5		2.5	
C-3	60	31		3		3	0.5		2.5	

*SS: Stone sludge
**B means bloating agent
+F means fluxing agent
++C means complex addition of various flux and bloating agents.

105, Sometech Vision, Korea)을 이용하였다. 부피비중 및 흡수율 측정은 KS F 2503 '굵은 골재의 비중 및 흡수율 실험' 방법을 사용하였으며, 한 종류 당 시편 5개의 측정값을 평균하여 나타내었다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 발포제 영향

점토와 석분오니에 여러 종류의 기름 발포제가 첨가된 B 계열 골재의 부피비중 및 흡수율을 Fig. 1에 나타내었다. 먼저 어떤 첨가제도 넣지 않고(No additive) 1150°C에서 소성된 시편의 부피비중은 ~1.5, 흡수율은 ~7 %이며, 1200°C에서 소성된 경우, 각각 ~2.0와 ~2 %로 나타났다. 즉 소성과정에서 발포(bloating) 현상은 나타나지 않고 일반적인 소성 특징인 치밀화가 진행되어 흡수율이 낮아지고 부피비중이 높아진 것이다.

1150°C에서 소성된 B 계열 골재의 부피비중 및 흡수율은 첨가된 기름 종류에 따라 큰 차이가 나지 않았다. 부피비중은 0.9~1.0, 흡수율은 41~55 % 범위이며, 이는 아무런 첨가물이 없이 제조된 골재에 비해 평균적으로 부피비중은 40 % 감소되고 흡수율은 8배 이상 증가된 것이다.

1200°C 소결된 B 계열 시편의 부피비중 및 흡수율 범위는 각각 0.5~0.7 및 94~110 %로 나타났다. 이는 점토와 석분오니만으로 제조된 시편에 비해 평균적으로 부피비중은 70 % 감소, 흡수율은 53배 증가된 값이다. 흡수율의 경우, 벙커C유를 사용한 시편에서 가장 낮은 부피비중과 가장 큰 흡수율을 나타내었다. 이는 각 기름의 비등점이 벙커C유는 360°C, 콩기름은 200°C, 그리고 진공오일은 218°C으로, 벙커C유가 가열과정에서 가장 늦게 가스를 발생하기 때문으로 생각된다.

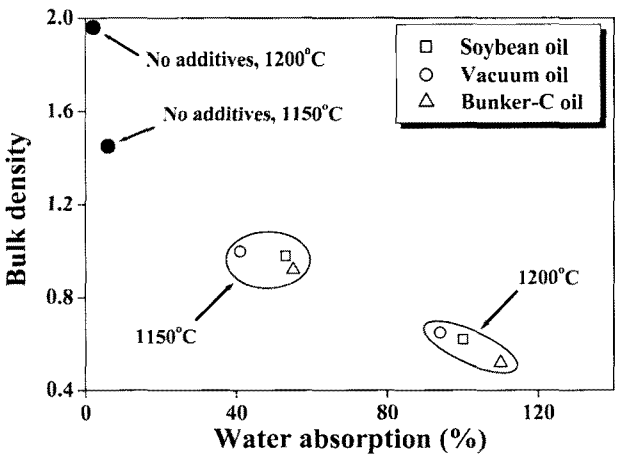

Fig. 1. Bulk density vs. water absorption diagram for the aggregates added with various kinds of bloating agents.

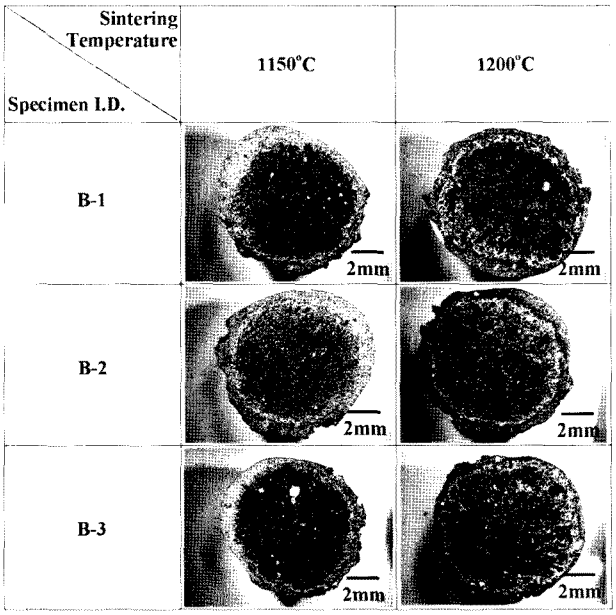

Fig. 2. Optical microscopic view for the cross section of the aggregates added with various kinds of bloating agents.

다양한 기름들을 발포제로 첨가하여 제조된 B 계열 골재의 단면을 광학현미경으로 Fig. 2에 보였다. 소성된 인공경량골재는 표면에 붉은 색 층이 형성되고 내부에는 검은 색 다공질이 형성되는데, 이들 부위를 각각 shell 및 black core라 한다. 표면의 붉은 색은 점토에 포함된 철성분 산화에 의한 것이고, 내부의 검은 색은 표피층에 의해 내부가 외부 분위기와 차단되면서 산화철이 환원되어 발색된 것이다[3, 7].

소성된 골재들은 발포제의 종류에 상관없이 많은 기공이 형성되었으며, 소성온도가 증가함에 따라 기공 합체에 따른 거대기공이 관찰되었다.

B 계열 골재에는 융제성분을 첨가하지 않았지만 shell 및 black core 구조가 형성되었는데 이는 원료인 석분오니에 융제성분인 알카리 및 알카리토류 산화물이 12 wt% 이상 포함되어있기 때문으로 생각된다. 그러나 B 계열 골재들은 Fig. 2에서 볼 수 있듯이 그 외형이 거칠고 shell 두께가 불균일하였다.

기름 첨가량을 3 wt%로 증가시킨 골재의 부피비중과 흡수율을 측정한 결과, 1 wt% 첨가시편과 거의 같은 값들을 보였으며, 이로부터 기름 발포제는 3 wt% 범위내에서 첨가량에 따른 효과는 없는 것으로 나타났다. 또한 기름 발포제를 3 wt% 이상 첨가하게 되면 성형이 어려워지는 문제가 발생하였다.

3.2. 융제 첨가 영향

소성 중 많은 양의 가스가 발생되어도 동시에 점성 액

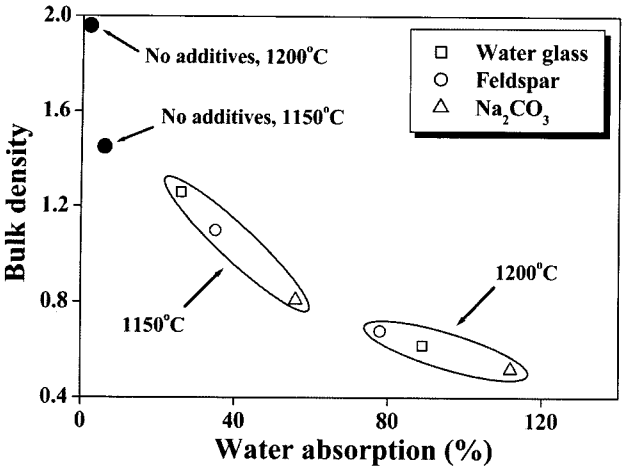

Fig. 3. Bulk density vs. water absorption diagram for the aggregates added with various kinds of fluxing agents and 1 wt% bloating agent, soybean oil.

상이 형성되어야 발포현상이 나타난다[3]. 발포제로서 콩기름을 선정하여 그 양을 1 wt%로 고정시키고, 다양한 융제를 첨가한 F 계열 골재의 부피비중 및 흡수율을 Fig. 3에 나타내었다. F 계열 골재를 B 계열 골재와 비교하면, 1150°C에서 소결된 경우, 부피비중 및 흡수율의 범위가 넓고 1200°C에서는 흡수율 범위가 더 넓었다 (Fig. 6의 겹친 그림 참조). 부피비중 감소에 큰 영향을 주는 융제는 Na_2CO_3, 장석, 물유리 순이었으며, 또한 흡수율 증가에 큰 영향을 주는 융제 역시 같은 순이었다.

1200°C 소성에서 F 계열 골재는 첨가된 융제 종류에 따라 부피비중이 크게 변화되지 않았으나 흡수율은 큰 차이를 나타내었다. 흡수율 증가에 큰 영향을 주는 융제는 Na_2CO_3, 물유리, 장석 순이었다. Na_2CO_3는 소성 시 Na_2O와 CO_2 가스로 분해되면서 액상형성과 가스발생을 동시에 일으키므로 발포현상을 더욱 촉진시키는 것으로 판단된다. 그러나 물유리 또는 장석이 첨가된 F-1 또는 F-2 시편의 경우, 오히려 융제가 첨가되지 않은 B-1 또는 B-2 시편에 비해서 비중은 높고 흡수율은 낮았다. 이는 융제성분이 과다하게 생성되어 개기공(open pore) 통로가 액상으로 막히면서 폐기공이 증가한 결과로 판단할 수도 있으나, 이와 관련된 추가 연구가 필요하다고 생각된다.

다양한 융제 첨가에 따른 F 계열 골재의 단면을 Fig. 4에 나타내었다. 소성된 대부분의 시편은 첨가된 융제의 종류에 관계없이 shell 일부분이 손실되거나 black core 부분이 밖으로 드러났으며 따라서 미세구조가 불균일하였다. 이는 급격한 가스 발생으로 시편이 팽창, 폭발하여 발생한 현상이다. 이로 인해 시편의 흡수율은 낮았으나 골재 물성이 시편마다 균일하지 않았다. 일부 shell이 박리되는 현상은 소성온도 및 Na_2CO_3 첨가량 증가와 함께 심화되었다.

3.3. 발포제 및 융제의 복합 첨가 영향

융제로서 장석을 선정하여 그 양을 2.5 wt%로 고정시키고, 여러 종류의 발포제를 복합적으로 첨가하여 제조된 C 계열 골재의 특성을 Fig. 5에 나타내었다. 사용된 3 종류 발포제 중 진공오일은 그 비등온도가 218°C이고, 카본은 700°C에서 연소되면서 CO 및 CO_2 가스를 발생하고, Fe_2O_3는 1100°C 이상에서 환원되면서 CO_2 가스를 발생시킨다[8].

1150°C에서 소결된 경우, 부피비중 및 흡수율은 각각 1.0~0.8 및 49~68 % 범위에 있으며 1200°C에서 소결된

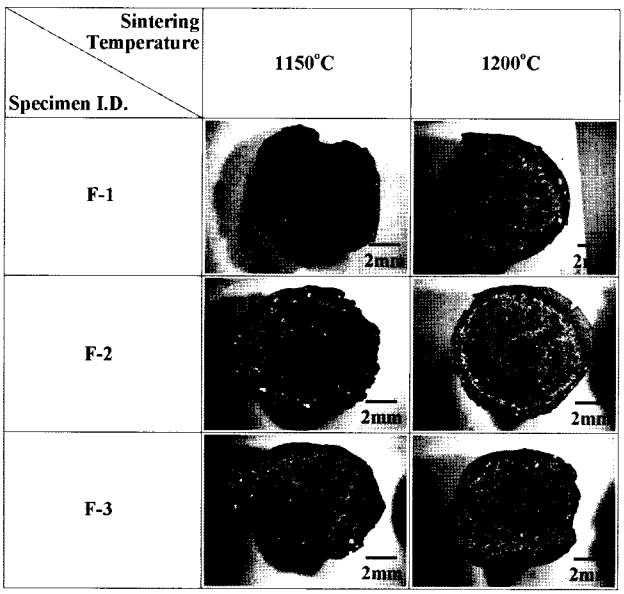

Fig. 4. Optical microscopic view for the cross section of the aggregates added with various kinds of fluxing agents and 1 wt% bloating agent, soybean oil.

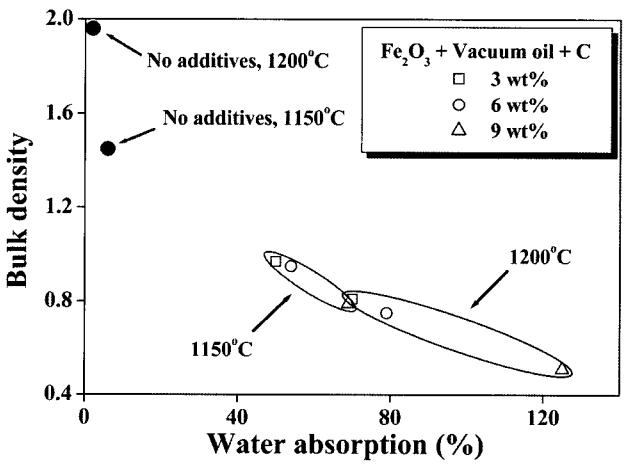

Fig. 5. Bulk density vs. water absorption diagram for the aggregates added with complex mixture of various kinds of fluxing and bloating agents.

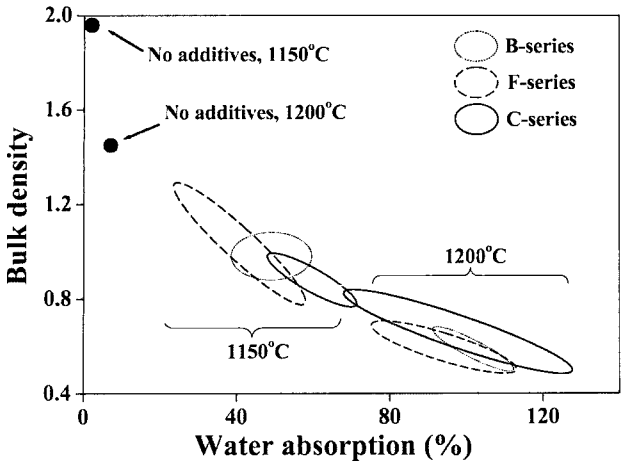

Fig. 6. Bulk density vs. water absorption diagram superimposed for the B-, F- and C-series aggregates.

경우에는 각각 0.5~0.8, 70~125 % 이였다. Fe_2O_3가 1 wt% 첨가되고 1200°C에서 소성된 C-1 골재의 경우, 첨가제 없이 제조된 골재(No additives)에 비교하여, 부피비중은 60 % 감소되고, 흡수율은 37배 이상 증가되었다.

B-, F- 그리고 C-계열 시편들의 부피비중 및 흡수율 결과를 함께 겹쳐서 Fig. 6에 나타내었다. 첨가제 없이 소결된 시편에 비해 모든 계열의 골재들이 더 우수한 경량골재 특성을 갖는다. F 계열 시편들의 부피비중 범위가 다른 계열보다 더 낮은 위치에 있어 경량화가 가장 잘 된 것으로 나타났다. 그러나 이는 Fig. 4에서 확인할 수 있듯이, shell의 일부가 떨어져나감으로서 발생된 결과로 생각된다. 흡수율의 경우에는 C 계열 시편의 오른쪽 끝

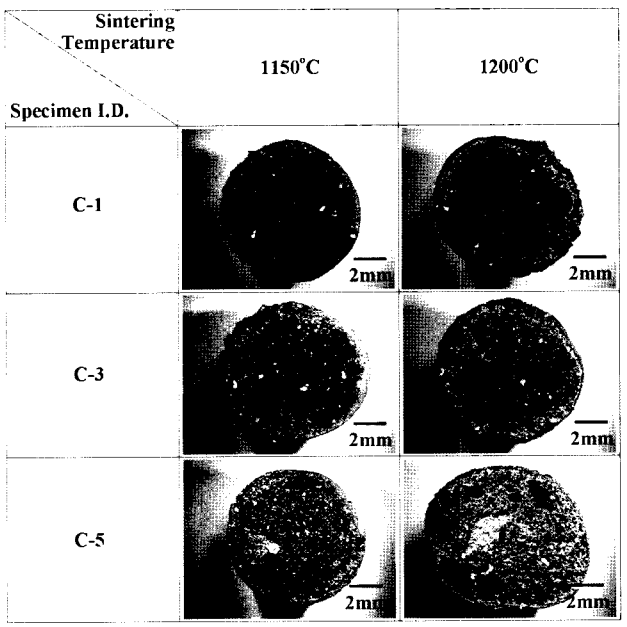

Fig. 7. Optical microscopic view for the cross section of the aggregates added with complex mixture of various kinds of fluxing and bloating agents.

단이 소결온도에 관계없이 가장 높은 값을 나타냈다.

다양한 발포제를 복합적으로 첨가하여 제조된 C 계열 골재의 단면을 Fig. 7에 나타내었다. 모든 시편에서 shell과 black core가 잘 형성되었으며 shell 의 두께도 비교적 얇고 균일함을 볼 수 있다. 전술한 바와 같이 B 계열 시편은 shell 두께가 두껍고 외형이 불규칙하였고 (Fig. 2), F 계열 시편은 소성 중 폭발로 인하여 shell 일부분이 손실되거나 내부의 black core 부분이 밖으로 드러나는 등 불규칙한 미세구조를 보인 반면(Fig. 4), C 계열 시편들은 외형이 매끄럽고 미세구조가 균일한 특성을 보였다. 1150°C에서는 발포제 첨가량에 따른 미세구조 변화가 크지 않았으나 1200°C 소결에서는 첨가량과 함께 시편이 크게 부풀어 오르고 기공이 거대화되는 경향을 관찰할 수 있다.

이와 같이 C 계열 시편은 미세구조가 균일하면서도 부피비중이 0.5~1.0, 흡수율은 50~125 범위의 우수한 경량 특성을 나타냈으므로, 다양한 분야로의 적용이 기대된다.

4. 결 론

점토와 석분오니에 발포제와 융제를 첨가하여 비중 1 이하의 인공경량골재를 제조하였다. 기름 발포제를 한 종류만 첨가하여도 부피 비중 0.5~1.0, 흡수율 41~110 % 범위의 다공성 인공경량골재 제조가 가능하였으나 골재 외형이 거칠고 미세구조가 불균일하였다. 융제 및 발포제가 각각 한 종류 씩 첨가된 골재는 소성 중 과도한 발포로 인하여 시편이 폭발하고 이로 인해 표피층(shell)의 일부가 소실되었다.

발포제로서 진공오일 외에 카본과 Fe_2O_3을 복합하여 첨가할 경우 black core와 shell 구조가 잘 형성되어 균일한 미세구조를 나타내었다. 이로부터 가스발생 온도가 서로 다른 여러 종류의 발포제를 복합적으로 첨가하는 것이 균일한 미세구조 형성에 효과적임을 확인하였다.

융제로서 장석을, 발포제로서 진공오일, 카본, Fe_2O_3을 복합하여 첨가하면 부피비중은 0.5~1.0, 흡수율은 50~125 %의 다양한 인공경량골재 제조가 가능하였고 따라서 본 연구에서 제조된 인공경량골재는 단열, 흡열, 차음성 건축제품 등에 적용가능 할 것으로 판단된다.

감사의 글

본 연구는 21C 프론티어 사업, 자원재활용 기술개발 사업단의 연구비 지원으로 수행되었습니다.

참 고 문 헌

[1] S. Chandra and L. Berntsson, "Lightweight Aggregate Concrete" (Noyes Pub., New York, 2003) p. 369.
[2] J.A. Rossignolo, M.V.C. Agnesini and J.A. Morais, "Properties of high-performance LWAC for precast structure with brazilian lightweight aggregates", Cement & Concrete Composite 25 (2003) 77.
[3] J.L. Clarke, "Structural Lightweight Aggregate Concrete" (Chapman & Hall, Glasgow, 1993) p. 5.
[4] C.M. Riley, "Relation of chemical properties to the bloating of clays", J. Am. Ceram. Soc. 34(4) (1951) 121.
[5] K.Y. Show, D.J. Lee, J.H. Tay, S.Y. Hong and C.Y. Chien, "Lightweight aggregate from industrial sludge-marin clay mixes", J. Environ. Engineering 131(7) (2005) 1106.
[6] S.M. Han, D.Y. Shin and S.K. Kang, "Preparation for porous ceramics using low grade clay", J. Kor. Ceram. Soc. 35(6) (1998) 575.
[7] F. Negre, A. Barba, J.L. Amoros and A. Escardino, "Oxidation of black core during the firing to ceramics ware - 2. Process kinetics", Br. Ceram. Trans. J. 91 (1992) 5.
[8] C.H.P. Lupis "Chemical Thermodynamics of Materials" (Elsevier Sci. Pub., New York, 1983) p. 141.