

# 지오폴리머 콘크리트 기술의 중요성 및 재료특성

## Importance and Characteristics of Geopolymer Concrete Technology



송진규 Jin-Kyu Song  
전남대학교 교수  
E-mail : jgsong@jnu.ac.kr



양근혁 Keun-Hyeok Yang  
경기대학교 교수  
E-mail : yangkh@kgu.ac.kr



송금일 Keum-Il Song  
전남대학교 학술연구 교수  
E-mail : zeon001@naver.com

### 1. 서언

무시멘트 결합재로 불리는 지오폴리머는 알루미늄과 실리카 성분이 풍부한 유리 질 형태의 산업부산물인 액상(수용액)상태의 금속알칼리에 의해 활성화 반응을 일으켜 결합재 성질을 갖는 물질을 말한다. 이때 생성된 반응생성물이 지오라이트상과 비슷하다고 하여 Davidovich(1991)가 최초로 지오폴리머(Geopolymer)라는 용어를 사용하였고 이를 상업화 시켰다<sup>1)</sup>. 그러나 여러 연구자들에 의해 반응기구나 사용재료 등에 따라 수많은 무시멘트 결합재 용어들이 제안되면서 이 분야를 처음 접하는 연구자들은 혼란을 겪을 수밖에 없었다. 이에 van Deventer(2010)는 원재료(Source material)에 따라 반응생성물의 성상이 서로 달라지는 특성을 고려하여 강알칼리 금속이온의 자극에 의해 경화되는 모든 물질을 알칼리활성재료(Alkali Activated Material)라고 명명하였다<sup>2)</sup>. 학술적으로 지오폴리머는 알칼리활성 재료들 중 하나지만, 오랫동안 사용되어온 이 용어는 여전히 무시멘트 결합재를 대표하는 용어로 사용되고 있다. 필자도 본고에서 지오폴리머의 의미를 거시적 관점에서 알칼리활성재료 즉, 무시멘트 결합재 전체를 의미하는 용어로 사용하였지만, 독자들의 혼란을 막기 위해 용어의 기원과 정의를 먼저 밝히는 바이다.

본고에서는 지구온난화 및 환경문제의 원인인 시멘트의 대체재로서 지오폴리머 기술의 중요성을 먼저 살펴보고, 지오폴리머의 대표적 원재료인 고로슬래그 미분말과 플라이애시의 재료적 특성들과 함께 이 재료들을 이용한 지오폴리머의 반응기구를 소개하고자 한다.

### 2. 지오폴리머 콘크리트 기술의 중요성

#### 2.1 시멘트의 온실가스 배출 문제

전세계 시멘트 콘크리트 산업은 2016년 기준 약 6.7조 달러의 시장 규모를 갖고 있

고 2020년까지 약 9.2조 달러까지 성장이 예상되는 등 건설 분야에서 큰 비중을 차지하고 있는 산업이다<sup>3)</sup>. 2015년 기준 시멘트의 전 세계 생산량은 46억 톤으로 제품을 만드는 재료로써는 산업 전 분야를 통틀어 물 다음으로 가장 많이 소비되는 재료이다. 시멘트는 반응성 칼슘실리케이트 및 알루미늄에이트상을 생성시키기 위해 석회석을 고온에서 분해시키는 소성공정이 필요한데, 이때 발생하는 이산화탄소의 배출량은 적어도 전체 산업에서 배출되는 이산화탄소의 5~8% 수준으로 집계되고 있다<sup>4)</sup>. 그리고 산업이 급속도로 발전하고 있는 개발도상국을 필두로 전 세계적으로 수습억 채의 집과 건물, 그리고 산업 인프라를 위한 구조물 등의 수요가 줄어들지 않고 있으며, 오히려 늘어나고 있다. 이산화탄소에 의한 대기의 온실효과를 더 이상 악화시키지 않으면서 시멘트의 수요를 만족시키기 위해서는 시멘트의 사용량을 줄이거나 시멘트가 아닌 다른 결합재의 개발이 필요하다. Gartner는 시멘트를 이루는 주요 성상들이 형성되면서 발생하는 이산화탄소량을 계산했는데, 킬른(kiln) 안에서 석회석이 분해되면서 발생하는 이산화탄소 배출량은 클링커(klinker) 1톤당 약 0.53톤이며, 이때 소비되는 연료 에너지를 이산화탄소 배출량으로 환산할 경우 클링커 1톤 생산 당 이산화탄소 약 0.34톤이 배출된다고 밝혔다<sup>5)</sup>. 즉, 시멘트 클링커 1톤 제조 시 이산화탄소가 약 0.87톤 배출되는 것이다. 시멘트의 제조 및 활용에서 대체연료의 사용, 콘크리트의 배합 최적화, 자원의 재활용 및 포졸란재의 사용 등으로 최대 17%까지 이산화탄소 배출량을 줄일 수 있다고 전문가들은 말하지만, 여전히 이산화탄소 배출량은 타 산업에 비교할 수 없을 정도로 높다<sup>6)</sup>.

아직까지 완벽하게 검토되지 않았지만, 지오폐리머와 같은 알칼리활성 결합재들은 산업부산물을 이용하기 때문에 고온의 소성공정이 생략되어 이산화탄소 배출문제에 있어서 포틀랜드 시멘트에 비해 여러 가지 이점이 있다. Duxson 등은 플라이애시나 메타카올린을 사용한 지오폐리머가 시멘트에 비해 이산화탄소 발생의 저감률이 약 80%정도 된다고 발표하였다<sup>7)</sup>. 결합재의 성능과 내구

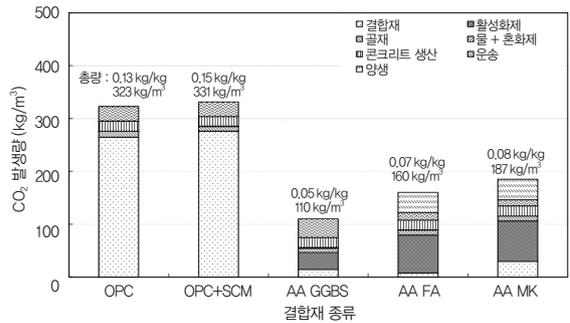


그림 1. 결합재종류에 따른 콘크리트 CO<sub>2</sub> 배출량의 비교

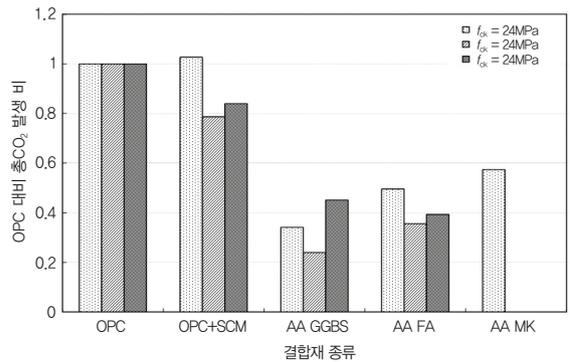


그림 2. 포틀랜드 시멘트 콘크리트에 대한 알칼리 활성 콘크리트의 CO<sub>2</sub> 저감비

성을 고려한 생애 전주기적으로 이산화탄소 배출량을 고려할 필요가 있지만, 대체적으로 지오폐리머는 시멘트에 비해 많게는 80%에서 적게는 30%까지 이산화탄소 배출량 감소 효과가 있는 것으로 조사되었다<sup>8)</sup>. 건설산업에서 시멘트 대신 지오폐리머를 건설재료로 사용하는 것은 온실가스 배출문제를 해결하기 위해 중요한 대안임이 분명하다.

## 2.2 시멘트의 환경 영향성

시멘트 제조 시 발생하는 환경 문제는 온실가스 배출 이외에도 여러 가지 문제가 발생한다.

첫 번째는 천연자원의 고갈이다. 시멘트의 수요는 여전히 매우 높지만 천연자원인 석회석의 매장량은 한계가

있다. 전 세계적으로 석회석 매장량이 상대적으로 적은 유럽과 동아시아 국가들은 머지않아 석회석광물이 고갈 될 상황에 처해있다. 우리나라 또한 석회석 매장량은 약 99.7억 톤으로서 시멘트 생산을 위한 가용년도는 약 150년 수준으로 평가된다. 하지만, 시멘트 대신 지오폴리머를 적극적으로 사용할 경우 대부분 산업부산물을 원재료로 사용하기 때문에 부존자원의 재활용과 석회석과 같은 천연자원의 보존효과를 기대할 수 있다.

두 번째는 유해물질의 대기유입 문제이다. 일부 선진국들의 시멘트 제조시설들은 수 십 년 전부터 킬른의 먼지나 다른 오염물질들을 효과적으로 포집하고 재활용 할 수 있도록 제조 설비를 개선하고 있지만, 최대 시멘트 생산국인 중국을 비롯한 대부분의 개발도상국의 시멘트 제조 설비는 그렇지 못한 실정이다. 연료의 연소에 의한 황화 가스 및 질소산화물과 미세먼지의 배출은 대기 환경적으로 큰 문제가 되고 있다.

세 번째는 중금속 등에 의한 수질 및 토양 오염 문제이다. 시멘트는 피부암이나 아토피를 유발하는 것으로 알려진 6가 크롬이나 5대 중금속 등이 다량 함유되어 있는데, 이것들은 물에 의해 용출되기 때문에 수중이나 지중에서 수자원 및 토양을 오염시킨다. 하지만, 지오폴리머는 원재료에 따라 달라지긴 하지만, 플라이애시나 고로슬래그 미분말을 이용하면 킬른 소성단계가 생략되기 때문에 시멘트보다 중금속 용출에 의한 문제에서 좀 더 자유롭다.

이렇듯 시멘트 대신 지오폴리머를 사용하면, 이산화탄소 배출 문제뿐만 아니라 천연자원 고갈, 대기오염, 중금속 등의 문제를 다소 해소할 수 있으며, 부산물의 재활용으로 폐기 비용까지 줄일 수 있어 환경 보호를 위한 좋은 대안이 될 수 있다.

### 3. 지오폴리머 콘크리트의 재료특성

#### 3.1 원재료(Source material)

지오폴리머는 시멘트를 사용하지 않는 결합재로써

CaO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 및 SiO<sub>2</sub>를 주요 구성성분으로 갖는 유리질의 산업부산물(원재료)과 알칼리금속이온으로 구성된다. 지오폴리머에 사용되는 주요 원재료는 위의 세 가지 주요 구성성분 중 칼슘 성분이 많은 고칼슘 기반(high calcium system)의 고로슬래그 미분말과 칼슘의 성분이 적은 저칼슘 기반(low calcium system)의 플라이애시와 메타카올린인 대표적이다. 지오폴리머의 원재료의 성상은 고온에서 구성성분들이 용융되어 있다가 급결에 의해 결정화되지 못한 유리질이다. 유리질인 원재료는 물과 만나더라도 원활한 반응이 일어나지 않기 때문에 자극제를 통해 유리질인 원재료를 용해시켜 반응을 유도한다. 알칼리 자극제에 의해 고로슬래그 미분말이 활성화되면 시멘트와 유사한 수화반응을, 플라이애시나 메타카올린은 (축)중합반응을 일으켜 경화된다.

#### 3.1.1 고로슬래그 미분말

고로슬래그는 용광로인 고로에서 철광석으로부터 선철을 분리할 때 발생하는 부산물로서, 지오폴리머 결합재의 원재료로 사용되기 위해서는 고온인 용융상태에서 급랭되어 유리질(비정질)형태가 되어야 한다. 슬래그의 냉각 방법은 미국에서 주로 사용하는 공랭식과 유럽이나 우리나라에서 사용되는 수쇄식이 있다. 수쇄식 분쇄는 용융상태의 슬래그를 공중으로 분사시킨 후 공중에서 고압으로 분출되는 냉각수에 의해 슬래그를 분쇄 및 냉각시키는 공정이며, 이렇게 냉각된 슬래그를 수쇄슬래그라고 부른다. 냉각된 수쇄슬래그를 건조 및 미분쇄 한 것을 고로슬래그 미분말이라고 하는데, 필요에 따라서 석고를 첨가하기도 한다. 우리나라에서 생산되는 고로슬래그 미분말은 비표면적이 약 4,000 ~ 5,000 cm<sup>2</sup>/g 수준 이다. 고로슬래그의 주된 화학성분은 철광석의 맥석, 코크스의 회분, 석회석 등으로부터 얻은 SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, CaO, MgO의 4가지 주성분이 전체의 약 96 ~ 97%를 차지하고 있으며, SiO<sub>2</sub>와 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>는 산기를 CaO와 MgO는 염기를 띠고 있는 유리질의 칼슘 알루미늄실리케이트이다.[표 1]

시멘트 클링커 광물은 물과 접촉하면 수화반응을 일으

[표 1] 고로슬래그 미분말의 화학적 평균 조성

SiO <sub>2</sub>	CaO	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	MgO	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	S	Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Na <sub>2</sub> O+K <sub>2</sub> O	MnO <sub>2</sub>	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	TiO <sub>2</sub>
27-40 %	30-50 %	5-33 %	1-2.1 %	< 1 %	< 3 %	0.003-0.007 %	1-3 %	< 2 %	0.02-0.09 %	< 3 %

켜 경화하는 수경성 물질이지만, 고로슬래그 미분말은 물과 접촉하더라도 수경성을 나타내지는 않는다. 다만, 알칼리 자극제로서 소량의 소석회 등이 존재하게 되면 현저한 수경성을 나타내는데, 이러한 현상을 잠재수경성이라 한다. 잠재라는 용어는 ‘겉으로 드러나지 않고 속에 잠겨 있거나 숨어 있음’이란 뜻으로 잠재수경성은 평상시에는 물과 반응해서 경화되는 ‘수경성’이 나타나지 않고 있다가 어떠한 자극이나 조건 상태가 되면 숨어있던 ‘수경성’ 특성이 나타난다는 뜻이다. 이때 자극이라는 의미는 잠자고 있는 성질을 불러내기 위한 어떤 조치 또는 충격을 의미하는 것으로, 고로슬래그의 경우 자극조건은 알칼리성 분위기로써 이러한 조건을 만들어주는 물질들이 알칼리 자극제이다.

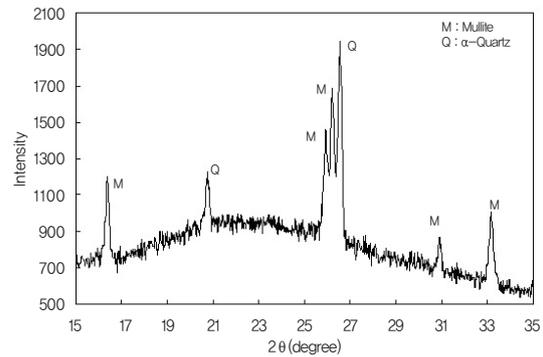
알칼리 자극제는 고로슬래그의 수화반응에 반드시 필요한 첨가제이지만 일단 수화반응을 불러일으킬 수 있는 최소량만 있으면 된다. 그 이후의 수화반응은 고로슬래그 자체에서 수화에 필요한 물질이 공급되기 때문에 지속적으로 진행된다. 고로슬래그는 앞서 언급했듯이 칼슘 알루미노실리케이트 유리질이기 때문에 강한 잠재수경성을 갖고 있다.

고로 슬래그는 각 구성 성분의 함량에 따라 반응성이 달라진다. 고로 슬래그의 반응성을 평가하기 위한 방법으로 SiO<sub>2</sub>의 중량에 대한 CaO, MgO 및 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 합계 중량 백분율 비를 염기도로 규정하고 있다. 염기도가 크다는 것은 고로 슬래그 내에 SiO<sub>2</sub> 성분이 적으며, 결정이 불안정한 상태로 반응성이 크다는 것을 나타낸다. 즉 고로 슬래그의 염기도가 높을수록 반응성이 커서 초기강도가 높게 나타난다. 식 (1)과 같이 염기도를 구할 수 있으며 KS F 2563은 염기도가 1.6 이상의 것을 사용하도록 규정하고 있다.

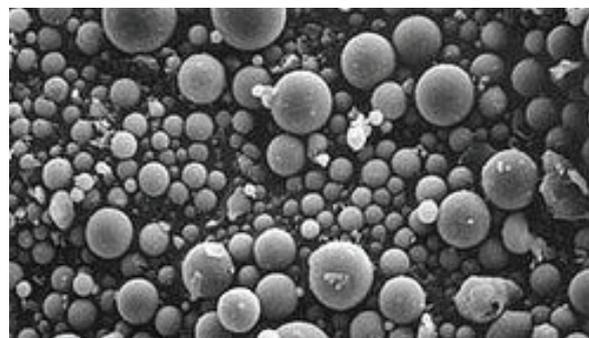
$$\text{염기도} = \frac{\text{CaO} + \text{MgO} + \text{Al}_2\text{O}_3}{\text{SiO}_2} \dots\dots\dots \text{식 (1)}$$

### 3.1.2 플라이애시

플라이애시와 메타카올린은 지오폴리머 콘크리트 생산에 가장 널리 사용되는 저칼슘 재료이며, 비용적인 측면에서 플라이애시가 메타카올린에 비해 상대적으로 많이 사용되고 있다. 플라이애시의 XRD 패턴 및 입형은 <그림 3>에 나타내었으며, 화학적 조성비를 [표 2]에 나타내었다. 플라이애시는 일반적으로 고로 슬래그보다 CaO 성분이 적으며, 구성요소의 대부분을 SiO<sub>2</sub>와 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 차지한



(a) XRD 패턴



(b) SEM

그림 3. 플라이애시 XRD 패턴 및 입형<sup>9)</sup>

[표 2] 플라이애시의 화학적 조성<sup>9)</sup>

SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TiO	K <sub>2</sub> O	SO <sub>3</sub>	LOI
57.70	28.60	4.70	0.67	5.08	1.53	0.57	0.68	0.1

다. 플라이애시의 입형은 약 60~90%가 구형을 띄며, 무정형 및 결정형의 혼합 상태로 구성되어 있다. 입자의 크기는 10 μm 정도이며, 입자 크기가 큰 플라이애시일수록 다공성의 입자를 많이 함유하고 있다. 플라이애시 입자의 크기가 5~600 μm 정도일 때 반응성이 매우 크다. 이러한 작은 입자의 크기는 기계식 포집장치보다 최근의 정전기집진 방식의 포집방법을 사용함으로써 쉽게 얻어진다. 일반적으로 플라이애시의 화학적 조성은 사용된 석탄의 종류와 연소 공정에 따라 달라진다.

### 3.2 자극제

지오폴리머 콘크리트에서 사용하는 알칼리 자극제는 그 화학적 구성요소에 따라 다음 6가지 그룹으로 분류된다<sup>10,11)</sup>.

- 가성 알칼리(caustic alkalis) : MOH
- 비규산질성 약산성염(non-silicate weak acid salts) : M<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, M<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>, M<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>, MF, 등
- 규산염(silicate) : M<sub>2</sub>O · nSiO<sub>2</sub>
- 알루미늄산염(aluminates) : M<sub>2</sub>O · nAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>
- 알루미늄 규산염(aluminosilicates) : M<sub>2</sub>O · Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> · (2-6)SiO<sub>2</sub>
- 비규산염 : M<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>

위의 자극제 중에서 콘크리트의 강도 발현 및 경제성을 고려하여 일반적으로 사용되고 있는 것은 수산화나트륨(NaOH), 탄산나트륨(Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>), 규산나트륨(Na<sub>2</sub>O · nSiO<sub>2</sub>) 및 황산나트륨(Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)이다. 나트륨 및 칼륨 화합물의 특성은 유사하므로 나트륨(Na)이외에 칼륨(K)화합물이 연구에서 일부 사용되어 왔지만 가용성 및 고비용으로 인해 잠재적 응용성은 제한적이다. 자극제의 특성 및 농도는 지오폴리머의 유동성과 강도발현 특성에 중요한 영향을 미친다. 특히 가성 알칼리는 고농도의

경우 폭발 및 화상의 위험이 있다. 또한 규산염을 자극제로 이용하면 반응 후 매트릭스가 경화된 상태에서 규산염의 용출 또는 용해가 발생할 수 있다.

지오폴리머의 강도발현에 대한 자극제 농도의 영향은 원재료에 따라 차이가 있지만, 일반적으로 자극제 농도가 높을수록 유리하다. 연구결과에 따르면 규산염을 자극제로 이용할 경우 [Na<sub>2</sub>O/고로슬래그] 중량비 3~5.5% 또는 [Na<sub>2</sub>O/플라이애시] 중량비 5~15%가 최적이며, 원재료의 화학적 조성을 고려하여 지오폴리머의 강도 발현은 알칼리 품질계수의 함수로 제시될 수 있다<sup>12)</sup>. OH<sup>-</sup> 이온 기반의 KOH 또는 NaOH 자극제는 적정 수준 이상으로 사용하면 콘크리트의 급결이 유발되고, 강도 증진 효과는 미흡하다. Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>는 첨가량의 증가와 함께 콘크리트 강도가 증가하지만 결합재 대비 약 13 퍼센트 이상에서는 급결 및 발열을 동반한다<sup>9)</sup>. 반면 CO<sub>3</sub><sup>2-</sup> 및 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 음이온을 포함하는 자극제는 OH<sup>-</sup> 이온에 비해 그 반응성이 다소 떨어진다. 최근에는 콘크리트의 급결 제어 및 20~40 MPa 수준의 강도 발현을 위하여 나트륨, 칼륨, 칼슘 등의 알칼리 금속 이온을 단독으로 사용하기보다는 혼합 사용을 권장하고 있다. 일반적인 혼합사용의 예는 다음과 같다.

- ① KOH+Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>
- ② NaOH+Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>
- ③ NaOH+Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>
- ④ Ca(OH)<sub>2</sub>+Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>
- ⑤ Ca(OH)<sub>2</sub>+Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>; Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>+Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>

### 3.3 반응기구

CaO의 함량이 높은 고로슬래그를 원재료로 사용한 지오폴리머(알칼리활성 슬래그 결합재)는 시멘트의 반응과

유사한 수화반응이 일어나고 CaO의 함량이 낮은 플라이 애시나 메타카올린, 실리카폼을 원재료로 사용한 지오폐리머는 중합반응이 일어난다.

먼저 고로슬래그를 원재료로 사용한 지오폐리머의 수화반응을 살펴보기 위해 고로슬래그의 조성구와 유사한  $2\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$  유리를 현탁액 상태로 수화시키면 표면에  $\text{A}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}(\text{ASH}_6)$  조성의 수화물이 약  $0.2 \mu\text{m}$  두께로 피막이 형성된다. 이 피막은 투과성이 나빠 유리질로부터 이온용출을 방해한다. 따라서 액상의 농도와 pH가 저하되어 더 이상의 수화반응은 진행되지 않는다. 그러나  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 나  $\text{Na}(\text{OH})$ 와 같은 자극제를 첨가하면, pH 12 정도의 알칼리성에 의해 피막이 파괴되어  $\text{Si}^{4+}$  및  $\text{Al}^{3+}$  이온, 특히  $\text{Al}^{3+}$  이온이 용출되기 때문에  $2\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$  유리의 수화반응은 진행된다.

〈그림 4〉는 고로슬래그와 유사한 구조인 칼슘을 함유하고 있는 알루미늄실리케이트 유리의 자극제에 의한 수화과정을 나타낸 모식도의 예이다<sup>3)</sup>.

낮은 pH인 7~10 정도에서 유리질은 매우 미량이지만 물의  $\text{H}^+$  이온과 유리질 중의 양이온인  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$  이온 등과 이온교환반응을 한다(그림 4 (a)). pH가 높아져 11~12 정도에 이르면  $\text{H}_2\text{O}$ 에 의한 가수분해 반응으로 인해 표면에 있는  $-\text{Si}-\text{O}-\text{Al}-$  결합의 Si, Al에 OH기가 흡착하여 표면이 수화된다(그림 4 (b)). pH=11~12에서 어느 정도의 시간이 경과하면, 알칼리인  $\text{OH}^-$  이온의 공격에 의해  $-\text{Si}-\text{O}-\text{Al}-$ 의 네트워크의 결합이

끊어진다(그림 4 (c)). 네트워크 결합이 끊어지면, 네트워크를 구성하고 있는  $\text{Si}^{4+}$ ,  $\text{Al}^{3+}$  이온을 비롯하여 내부에 갇혀있던  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Na}^+$  이온 등이 용출된다(그림 4 (d)). 용출된  $\text{Si}^{4+}$ ,  $\text{Al}^{3+}$  이온은  $\text{OH}^-$  이온과 결합하여  $\text{Si}(\text{OH})_3\text{O}^-$ ,  $\text{Al}(\text{OH})_4^-$  음이온을 형성하고,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Na}^+$  이온은 그대로 양이온으로 존재한다. 그 후 어느 정도 농도(포화농도)가 되면 음이온과 양이온이 결합하여 칼슘실리케이트 수화물(C-S-H)이나 칼슘알루미네이트 수화물(C-A-H)을 형성하면서 경화한다. 따라서 알칼리 자극제는 고로슬래그의 표면이 pH 12 전후까지 상승시킬 수 있는 양만 공급되면 된다. 일단 용출반응이 시작되면 고로슬래그 자신으로부터 용출되는 알칼리성분에 의해 pH는 지속적으로 12 이상을 유지하므로 더 이상의 자극제의 투여는 필요하지 않다. 이렇게 자극제의 작용에 의해 고로슬래그 표면으로부터 용해된 각종 이온 등은 어느 농도 이상이 되면 수화물로 석출되고, 그 이후에는 용해와 석출이 지속적으로 일어나면서 경화가 진행된다.<sup>14)</sup>

플라이애시와 같이  $\text{SiO}_2$ 와  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 가 풍부한 재료를 이용한 지오폐리머 결합재의 반응에 관해서 Glukhovsky는 이런 재료의 활성화 반응 메커니즘이 파괴-응집, 응집-축합, 축합-결정화의 3가지 단계로 이루어져 있다고 제안하였으며, Palomo와 Fernández-Jiménez는 제올라이트 합성에 기반하여 핵 형성과 성장의 2단계로 구성된 플라이애시의 구체적인 활성화 모델을 제안하였

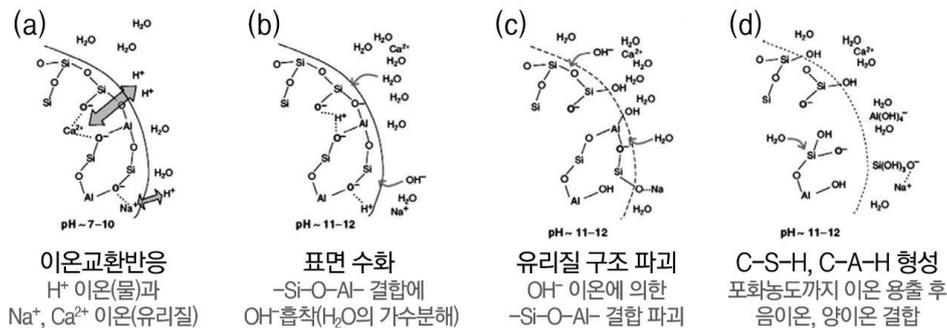


그림 4. 알루미늄실리케이트 유리의 알칼리( $\text{OH}^-$  이온) 침식에 의한 이온 용출모델<sup>3)</sup>

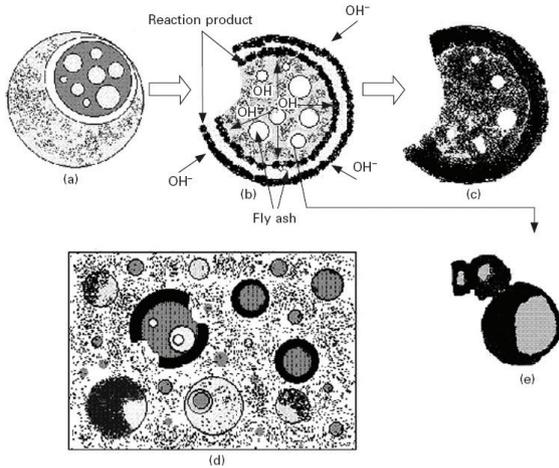


그림 4. 알루미늄실리케이트 유리의 알칼리(OH<sup>-</sup>이온) 침식에 의한 이온 용출모델<sup>3)</sup>

다.<sup>15,16)</sup> 핵 형성은 플라이애시에 존재하는 알루미늄산염이 용해되어 복합 이온이 형성되는 단계로 Glukhovsky가 제안한 파괴-응집, 응집-축합 단계에 해당하며 열역학 및 동역학적 파라미터에 따라 크게 달라진다. 핵 성장 단계는 핵이 임계 크기에 도달하여 결정이 자라기 시작하는 단계로 반응속도는 매우 느리다. 플라이애시의 알칼리 활성화에 의한 최종 결과물은 시멘트 성질을 갖는 비정질 매트릭스이며, 주요 성분이 N-A-S-H 겔 또는 제올라이트 전구체로 알려진 알루미늄규산염 겔이다. 또한 Palomo와 Fernández-Jiménez는 SEM 분석에 기초하여 <그림 5>와 같이 플라이애시의 알칼리 활성화에 대한 개념 모델을 제안하였다. 알칼리 활성화는 플라이애시 표면의 화학적 침식<그림 5(a) 참조>으로부터 시작되며, 그 결과로 플라이애시 입자의 벽에 작은 공동이 형성되어 내부에 있는 작은 입자들은 알칼리 환경에 노출된다. 이 반응 단계에서 알칼리는 플라이애시 입자 안쪽과 바깥쪽에서 침식을 유발한다<그림 5(b) 참조>. 이러한 지속된 용해과정의 결과로 <그림 5(c)>와 같이 플라이애시 안쪽과 바깥쪽에서 생성된 반응 생성물들이 석출된다. 석출된 반응 생성물은 더 작은 미반응 플라이애시를 덮어 이들이 알칼리 용액과 접촉하는 것을 방해<그림 5(e)>

참조>한다. 마지막으로 플라이애시 입자가 알칼리에 의해서만 침식되는 반응 생성물로 둘러싸여 있어 알칼리 활성화 반응은 확산 메커니즘에 의해 지속적으로 서서히 진행된다. 이는 서로 다른 형태학적 특징이 동일한 페이스트(미반응 플라이애시 입자, 알칼리 침식 중인 입자, 반응 생성물(N-A-S-H 겔, 제올라이트 등))에 공존할 수 있는 상황에 이르게 한다<그림 5(d) 참조>.

#### 4. 결론

무시멘트 결합재인 지오폐리머에 대한 본격적인 연구는 비교적 길다. 1940년 영국의 Purdon의 연구를 시작으로 70년이 넘는 긴 시간 동안 지오폐리머에 관한 연구가 전 세계적으로 진행되어 왔다. 하지만, 연구주제는 반응 메커니즘이나 성능검증과 같은 학술적인 연구들이 대부분이었고, 실용화나 현장적용 등의 사례는 많지 않다. 지오폐리머는 시멘트의 대체재로서 연구되었지만, 시멘트의 강력한 성능과 경제성 때문에 좀처럼 현장에 적용되지 못했기 때문이다. 다만, 1960년대부터 1990년대까지 산업이 급속도로 발전한 과거 일부 공산국가에서 시멘트 공급이 부족한 상황 때문에 정부 주도로 지오폐리머가 시멘트 대체재로서 사용되었다. 하지만 그마저도 1980년대 이후 구소련 붕괴로 공산국가들이 차례로 몰락하면서 지오폐리머는 건설현장에서 더 이상 사용되지 못했다.

2010년 이후 전 세계적으로 기후온난화와 환경문제가 좀 더 구체적으로 이슈화되고, 시멘트의 환경영향 문제가 강력하게 제기되면서 선진국을 필두로 시멘트의 사용량을 줄이고자 노력하고 있다. 물론 시멘트 제조사들은 설비를 개선하거나 연료효율을 높이는 방법으로 이를 해결하려고 하지만, 근본적으로 시멘트 제조 시 석회석의 소성과정에서 발생하는 다량의 이산화탄소의 배출은 설비의 개선만으로 해결 할 수 있는 문제가 아니다. 우리는 머지않은 미래에 반드시 시멘트의 생산량을 줄여야 할 상황에 직면하게 될 것이고, 이는 어느 한 국가만의 문제가 아니라 범지구적인 차원에서 전 세계 모든 국가가 감당해

야 할 중요한 임무가 될 것임이 분명하다. 과거 공산국가에서 시멘트 부족을 해결하기 위해 지오폴리머를 현장에 적용했던 사례처럼, 앞으로는 기후온난화와 환경보존 측면에서 시멘트 대신 지오폴리머를 사용할 날이 반드시 올 것이며, 우리는 이를 미리 준비해야 한다.

면에서 시멘트 대신 지오폴리머를 사용할 날이 반드시 올 것이며, 우리는 이를 미리 준비해야 한다.

담당 편집위원 : 고경택(한국건설기술연구원)

#### 참고문헌

1. Davidovits, J. : Geopolymers – inorganic polymeric new materials. *J. Therm. Anal.* 37 (8), 1633–1656 (1991)
2. van Deventer, J.S.J., Provis, J.L., Duxson, P., Brice, D.G. : Chemical research and climate change as drivers in the commercial adoption of alkali activated materials. *Waste Biomass Valoriz* 1 (1), 145–155 (2010)
3. TECHNAVIO's report : GLOBAL CONCRETE AND CEMENT MARKET 2016–2020. <http://www.technavio.com/report/global-construction-concrete-and-cement-market> (2016)
4. Scrivener, K.L., Kirkpatrick, R.J. : Innovation in use and research on cementitious material. *Cem. Concr. Res.* 38 (2), 128–136 (2008)
5. Gartner, E. : Industrially interesting approaches to “low-CO<sub>2</sub>” cements. *Cem. Concr. Res.* 34 (9), 1489–1498 (2004)
6. Damtoft, J.S., Lukasik, J., Herfort, D., Sorrentino, D., Gartner, E. : Sustainable development and climate change initiatives. *Cem. Concr. Res.* 38 (2), 115–127 (2008)
7. Duxson, P., Provis, J.L., Lukey, G.C., van Deventer, J.S.J. : The role of inorganic polymer technology in the development of ‘Green concrete’. *Cem. Concr. Res.* 37 (12), 1590–1597 (2007)
8. Yang, K. H., Song, J. K., and Song, K. I., “Assessment of CO<sub>2</sub> Reduction of Alkali-Activated Concrete,” *Journal of Cleaner Production*, Vol. 39, No. 1, 2013, pp. 265–272.
9. 양근혁, “알칼리활성 결합재에 기반한 그린콘크리트 개발,” 과학기술보고서, 한국연구재단, 2011.
10. Shi, C., Krivenko, P. V., and Roy, D., “Alkali-activated Cements and Concrete”, Taylor & Francis, London and New York, 2006.
11. Pacheco-Torgal, F., Castro-Gomes, J., and Jalali, S., “Alkali-activated Binders : A Review Part 1. Historical Background, Terminology, Reaction Mechanisms and Hydration Products,” *Construction and Building Materials*, Vol. 22, No. 7, 2008, pp. 1315–1322.
12. Yang, K. H., Song, J. K., Ashour, A. F., and Lee, E. T., “Properties of Cementless Mortars Activated by Sodium Silicate,” *Construction and Building Materials*, V. 22, No. 9, 2008, pp. 1981–1989.
13. C. Li., H. Sun and L. Li., A Review : The Composition between Alkali -Activated Slag(Si+Al) and Metakaolin (Si+Al) Cements, *Cement and Concrete Research*, 40, 1341–1349 (2010)
14. 이승현, 김원기, 강석화, “고로(수쇄)슬래그의 수화반응 메커니즘,” *한국콘크리트학회논문집, 한국콘크리트학회*, Vol. 24, No. 6, 2012, pp. 31–34.
15. Glukhovskiy, V., “Ancient, modern and future concretes,” *First International Conference Alkaline Cements and Concretes*, Kiev, Ukraine, Vol. 1, 1994, pp. 1–8.
16. Palomo, A., Alonso, S., Fernández-Jiménez, A., Sobrados, I., and Sanz, J., “Alkaline activation of fly ashes. A NMR study of the reaction products,” *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 87, No. 6, 2004, pp. 1141–1145.
17. Fernández-Jiménez, A., and Palomo, A., “Si and Al MA S NMR characterization of cement – State of art,” *Cemento-Hormigón*, 2010, pp. 936.
18. Fernández-Jiménez, A., Palomo, A., and Criado, M., “Microstructure development of alkali-activated fly ash cement : a descriptive model,” *Cement and Concrete Research*, V. 35, No. 6, 2005, pp. 1204–1209,1