J Rec Const Resources 9(4)460-468(2021)
https://doi.org/10.14190/JRCR.2021.9.4.460

Print ISSN : 2288-3320
Online ISSN : 2288-369X

지오폴리머의 강도와 내구성에 영향을 미치는 요인에 대한 고찰
Factors Effecting the Strength & Durability of Geopolymer Binder: A Review

온정권[1] · 김규용[2*] · 사수이[3] · 이예찬[3] · 유하민[3]
Jeong-Kwon On[1] · Gyu-Yong Kim[2*] · Sasui Sasui[3] · Yae-Chan Lee[3] · Ha-Min Eu[3]

(Received September 29, 2021 / Revised October 6, 2021 / Accepted October 6, 2021)

Owing to the production of conventional concrete/cement, the climate crises is increasing and is mainly caused greenhouse gas (GHG) emission into the environment by industrial process. To reduce the emission of GHG, and excessive consumption of energy, research on geopolymer binder is increasing as it is environmentally friendly compared to the conventional binders such as Portland cement. The research on improving the strength and durability of geopolymer cement becomes one of the trending researches. Generally, the strength and durability of geopolymer binders are improved by altering alkaline solution & its concentration, the precursor materials and curing temperature & time, which significantly influence the chemical composition and microstructure of geopolymer to which the strength and durability of geopolymers relies. This paper included the detailed discussion on the factors affecting the mechanical properties and durability of geopolymer binder and the influence of reaction mechanism on the strength and durability of geopolymer is also discussed in this paper.

키워드 : 지오폴리머, 중합반응, 압축강도, 내구성
Keywords : Geopolymer, Polymerization, Compressive strength, Durability

1. 서 론

전 세계적으로 포틀랜드 시멘트로 제작된 콘크리트는 건설재료로서 널리 사용되고 있다. 2006년에 생산된 시멘트량은 25억만 톤에 달하며, 2025년에는 연간생산량이 50억만 톤이 될 것으로 예상된다. 한편, 포틀랜드 시멘트의 생산은 석회석과 같은 천연자원을 고갈시키고, 막대한 에너지를 소비하며, CO_2와 기타 온실가스(Greenhouse gases; GHG)를 배출하기 때문에 환경에 부정적인 영향을 끼친다(Naik 2008). 이러한, 포틀랜드 시멘트는 100만 톤을 생산할 때 14,000kcal의 에너지가 필요하기 때문에 건설재료 중 세 번째로 에너지소비량이 크고(Naik and Kraus 1999), 1 톤을 생산하면 0.8 톤의 이산화탄소를 배출한다(Rashad and Zeedan 2011).

이와 같이, 과도한 이산화탄소의 배출, 에너지 소비, 천연자원의 고갈을 막기 위해 시멘트로 제작된 콘크리트의 대체재로 지오폴리머에 대한 연구가 진행되고 있다(Neupane 2016). 지오폴리머는 1978년에 Davidovits에 의해 처음 발명된 재료로 알칼리 반응물질과 규소-알루미늄 전구물질의 중합반응으로 만들어진 복합체이다(Davidovits 2011). 이러한, 지오폴리머는 보통 포틀랜드 시멘트와 비교하였을 때, 에너지 소비량과 이산화탄소 배출량이 적고 산업폐기물과 같은 순환재료의 사용성을 증가시킨다고 보고하고 있다(Jamieson et al. 2015; Neupane 2016; Ouellet-Plamondon and Habert 2015).

친환경적인 지오폴리머를 제작하기 위해서, 전구물질로써 플라이애쉬, 슬래그 등과 같은 산업폐기물에 대한 연구가 진행되고 있다. 플라이애쉬는 독성물질을 함유하고 있어 산업폐기물의 상태로 존재하면 생태계와 환경에 부정적인 영향을 끼친다(Nomura et al. 2010; Neupane and Donahoe 2013; Sasui et al. 2021). 하지만, 플라이애쉬를 산업폐기물의 상태로 두지 않고 지오폴리머 제작에 사용하면 지오폴리머를 형성하는 알루미노실리케이트를 함유하

* Corresponding author E-mail: gyuyongkim@cnu.ac.kr
[1]무영CM 건축사사무소 대표이사 (Mooyong CM, 109 Jung-daero, Songpa-gu, Seoul, 05718, Korea)
[2]충남대학교 건축공학과 교수 (Department of Architectural Engineering, Chungnam National University, Daejeon 34134, Korea)
[3]충남대학교 건축공학과 대학원생 (Department of Architectural Engineering, Chungnam National University, Daejeon 34134, Korea)

Copyright ⓒ 2021 by Korean Recycled Construction Resources Institute
This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited

고 있기 때문에 친환경적인 지오폴리머의 생산이 가능하다(Li et al. 2013).

이와 같이 시멘트의 대체재로 주목받는 지오폴리머에 대해서 기존의 연구들은 강도와 내구성이 알칼리의 종류 및 농도, 양생 온도 및 시간, 전구물질의 Si-Al의 비율과 같은 요인들에 밀접한 관련이 있다고 보고하였지만, 이를 체계적으로 종합한 문헌은 부족한 실정이다.

따라서, 본 논문에서 지오폴리머의 압축강도 및 내구성에 관련된 문헌을 중심으로 고찰하여 지오폴리머의 메커니즘에 대한 고찰, 중합반응에 의한 미세구조의 형성을 통해 압축강도와 내구성에 미치는 영향에 대해 고찰하였으며, 나아가 지오폴리머를 건설자원으로써 활용하기 위한 연구 방향을 제시하고자 하였다.

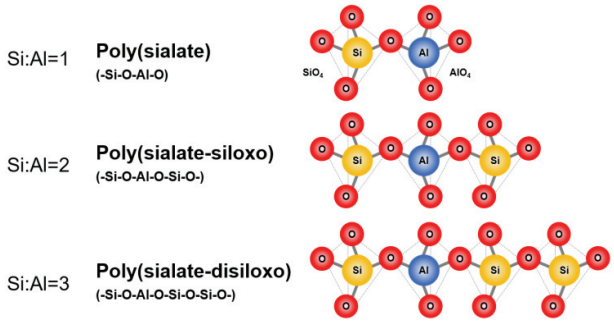


Fig. 1. Formation of polysialate rings depending on Si-Al ratio (Davidovits 2002)

2. 지오폴리머의 메커니즘에 대한 고찰

Davidovits에 의해 정의된 것처럼 지오폴리머는 전구물질이 고체에서 겔 상태로 전환된 후 혼합물과 합성하는 물질이다. 이와 같은 단계를 거치면서 Al^{3+}와 Si^{4+}가 침출되고 겔 상태로 분해되며, 이 과정에서 Al와 Si의 응결이 동시에 발생된다. 지오폴리머가 경화되는 과정에서 매트릭스 내부공극에 있는 분자들이 조금씩 움직이면서 겔상들이 자리를 차지하는데, 구체적으로, 전구물질에 알칼리 용액이 더해지면 전구물질에 있는 Al과 Si가 탈수되어 Al^{3+}와 Si^{4+}가 방출된다. 이렇게 방출된 물질들이 반응하면서 저중합체 산소 폴리시아레이트 구조를 만들어 SiO_4와 AlO_4를 생성한다.

이러한, 폴리시아레이트는 Al^{3+}와 Si^{4+}가 4개의 산소와 결합하여 링형으로 만들어진다. 일반적으로 (-)극성을 띄는 Al^{3+}는 알칼리 용액이 첨가되었을 때 산소와 결합하거나, (+)극성을 띄는 Na^{+}나 K^{+}와 만나 Al의 (-)극성과 균형을 맞춘다. 저중합체 산소 폴리시아레이트는 Fig. 1과 같은 3가지 종류의 구조 중 하나이다. 이러한 구조는, Si-Al 비율에 따라 달라지며, 폴리시아레이트 -Si-O-Al-O-, 폴리시아레이트 실록스 -Si-O-Al-O-Si-O- 또는 폴리시아레이트 디실록스 -Si-O-Al-O-Si-O-Si-O-로 나뉜다. 폴리시아레이트는 양생 온도에 따라 비정형인 것부터 수정형까지 다양해지는데, 불확실한 온도(50°C이하)에서는 결합이 이루어지는 비정형 구조를 가지고, 150~180°C에서는 수정형의 구조를 가진다고 보고하고 있다(Davidovits 1991).

일반적으로, 중합반응에서 Al^{3+}와 Si^{4+}가 Ca^{2+}와 반응하면 C-S-H, C-A-H, C-A-S-H와 같은 겔을 형성하는데, 알칼리 환경에서 충분한 양의 칼슘(Ca)과 규소(Si)가 녹으면, Ca^{2+}가 지오폴리머화 과정에서 겔 생성에 관여하여 지오폴리머의 미세구조를 변화시킨다(Diaz et al. 2010; Schmücker and MacKenzie 2005). 이러한 Ca^{2+}은 CAO 형태의 전구물질을 통해 얻거나 추가로 첨가할 수 있는데(Diaz et al. 2010), 이 중 슬래그는 SiO_2와 CaO를 70%이상 함유하고 있어 칼슘(Ca)과 규소(Si)를 동시에 얻을 수 있는 전구물질 중 하나이다(Manz 1999). 이러한 전구물질을 통해, C-S-H겔과 지오폴리머 겔이 동시에 형성되면, 반응되지 않은 입자들과 수화물 사이의 간격을 메워 매트릭스를 밀실하게 만들어 지오폴리머의 강도를 향상시키는 것으로 보고되고 있다(Yip et al. 2005)

3. 압축강도에 영향을 미치는 요인

알칼리 용액의 농도와 종류, Si-Al 비율, 양생 온도와 양생 시간은 지오폴리머의 압축강도에 큰 영향을 미친다. 일반적으로 Si-Al 비율과 알칼리 용액의 농도는 Al^{3+}와 Si^{4+}의 침출량에 큰 영향을 미치며, 침출되는 양이 많을수록 재료를 더욱 균질하고 밀실하게 만든다. 또한, 양생 온도와 적정한 알칼리 용액의 농도는 응결과정에서 지오폴리머화를 촉진하는데 기여하며, 양생 온도 및 시간은 매트릭스 구조사이의 부착력에 관여한다.

3.1 알칼리 용액의 농도

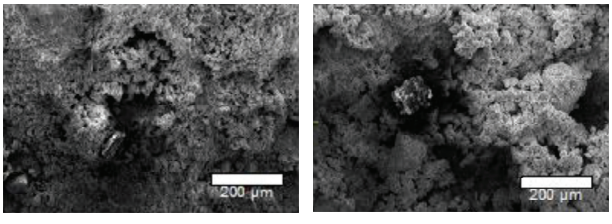
고농도의 알칼리 용액은 지오폴리머화 과정에서 전구물질 내의 알루미노실리케이트를 분해하는데 효과적이다. 하지만, 지오폴리머의 최대 압축강도가 발현되기 위해서는, 적절한 농도의 알칼리 용액이 첨가되어야 한다.

알칼리 농도와 지오폴리머의 강도의 관계는 다음과 같은 논문에서도 찾아볼 수 있다. Patankar et al.(2014)은 0.4 (Al-Si 비율)의 알칼리 용액을 첨가하였으며, 플라이애쉬 기반 지오폴리머의

압축강도 개선을 위해서는, 13.11M 또는 15.08M보다는 11.01M가 최적의 NaOH 농도라고 보고하였다. 또한, Somna et al.(2011)은 0.3(Al–Si 비율)의 알칼리 용액을 플라이애쉬 기반 지오폴리머에 첨가하였는데, NaOH 14M일 때 압축강도가 가장 높았지만, NaOH 16.5M를 첨가하였을 때는 압축강도가 저하하였다. 이러한 결과는 높은 농도의 NaOH는 혼합물의 점성을 증가시키고 OH^-이 많아지게 하는데, OH^-는 중축합반응을 방해하고 초기 단계에서 알루미노실리케이트를 응고시켜 지오폴리머의 압축강도를 저하시키 때문이라고 보고되고 있다(Somna et al. 2011).

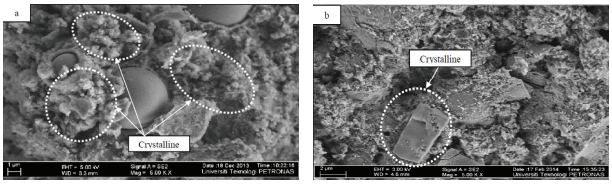
3.2 알칼리 종류

알루미노실리케이트를 분해하기 위해 첨가되는 알칼리는 농도뿐만 아니라 종류도 압축강도에 영향을 미친다(Davidovits 1991; Zhang et al. 2016). 이를 증명하기 위해, Purbasari et al.(2018)의 연구에서 연소한 대나무와 카올린 재를 NaOH와 KOH로 각각 촉진하였는데 결과적으로, NaOH 용액을 사용한 것이 KOH 용액을 사용한 것보다 압축강도가 높게 나타났다. 또한, Abdul et al.(2015)의 연구에서도 KOH 용액보다 NaOH 용액을 사용한 플라이애쉬 기반 지오폴리머의 압축강도가 높게 평가되었다. 앞선 두 연구는 NaOH의 Na^+이 KOH의 K^+보다 크기가 작기 때문에 알루미노실리케이트를 용해하는데 더 효과적인 것으로 보고하고 있다(Panagiotopoulou et al. 2007; Xu and Van Deventer 2000).



(a) NaOH (b) KOH

Fig. 2. Microstructure of residuals of Bamboo and kaolin activated with NaOH & KOH(Purbasari et al. 2018)



(a) NaOH (b) KOH

Fig. 3. Microstructure of fly ash activated with NaOH & KOH (Abdul et al. 2015)

이러한 결과는 SEM 사진에서도 알 수 있다. Fig. 2는 연소한 대나무와 카올린재를 전구물질로 사용하여 각각 NaOH와 KOH로 촉진한 지오폴리머를 나타냈으며, Fig. 3은 플라이애쉬를 전구물질로 사용하여 각각 NaOH와 KOH로 촉진한 지오폴리머를 나타냈다. 두 종류의 알칼리 용액을 비교하였을 때, 전구물질에 관계없이 KOH를 사용한 경우보다 NaOH를 사용하였을 때, 지오폴리머 매트릭스가 더욱 밀실하게 형성되었다. 이를 통해, 알칼리 용액으로 NaOH를 사용하였을 때, 매트릭스가 더욱 밀실하게 형성되어 압축강도의 향상으로 이어지는 것을 알 수 있다(Abdul et al. 2015; Purbasari et al. 2018).

3.3 Si–Al 비율

일반적으로는 Si–Al 비율이 높으면 -Si–O–Si– 결합이 증가하며, 이는 -Si–O–Al– 결합보다 강하다. 이러한 결합은 Si–Al 비율을 높이는 Si의 첨가량에 따라 달라지며, 기존 연구에서 Si가 다량 함유된 Na_2SiO_3와 Si가 풍부한 전구물질을 혼합하여 지오폴리머의 압축강도를 향상시키기 위한 연구가진행되고 있다.

이러한 연구에 사용되는 고로슬래그는 칼슘(Ca)과 규소(Si) 모두 다량 함유된 전구물질 중 하나이다. 고로슬래그에 칼슘(Ca)이 다량 함유되었기 때문에 C–A–S–H 겔을 형성하여 매트릭스의 공극을 줄이며, 슬래그는 적절한 SiO_2와 Al_2O_3가 함유되어있기 때문에 플라이애쉬와 함께 Si–Al비율을 증가시켜 높은 압축강도를 발현할 수 있게 한다(Fang et al. 2018; Yang et al. 2012).

또한, 왕겨 및 레드머드와 같은 재료들도 지오폴리머의 전구물질로 사용된다. 왕겨의 75%는 SiO_2로 이루어져 플라이애쉬와 함께 겔 내부에서 -Si–O–Si–결합을 증가시키며, 레드머드는 혼합물에서 알칼리 같은 역할을 하고, 플라이애쉬의 Si–Al비율에 맞춰 조절 가능한 금속물질의 산화물과 수산화물을 함유하고 있기 때문에 알칼리의 사용을 줄일 수 있다(He et al. 2013; Nazari et al. 2013; Zhang et al. 2014).

한편, Na_2SiO_3는 Na의 함량을 증가시켜 중합 과정을 촉진시키고 압축강도를 향상시킨다. 하지만 Na_2SiO_3는 적정한 범위에서만 효과를 얻을 수 있으며 그렇지 않으면 구조를 형성하는데 문제가 될 수도 있다(Škvára et al. 2006). Duxson et al.(2007)의 연구와 같이 $NaSiO_3$의 SiO_2/M_2O비율이 0.0~1.5로 증가할 때 압축강도도 증가하는 비례적인 관계에 있지만, 비율이 2.0일 때는 압축강도가 감소한다고 보고하였다. Palm oil boiler재 기반 지오폴리머에서도 $NaSiO_3$와 NaOH의 비율이 2.5를 초과하면 압축강도가 저하하는 비슷한 경향을 나타냈다(Yahya et al. 2015).

3.4 양생 온도 및 시간

양생 시간과 양생 온도 또한 지오폴리머의 압축강도에 영향을 미친다. 지오폴리머를 60~80°C 고온으로 양생하면 압축 강도가 높아지는데 이는, 온도가 올라가면 물이 미세공극을 채워주면서 구조물을 치밀하게 만들기 때문이다(Leung and Pheeraphan 1995). 하지만 온도 증가와 함께 양생 시간을 늘려주면 과도한 수축과 탈수과정을 거치기 때문에 지오폴리머의 미세구조를 파괴시켜 압축강도가 감소하는 경우도 있다(Palomo et al. 1999).

한편, 양생 시간 및 온도는 시험체 크기도 연관이 있다. Al Bakria et al.(2011)에서 연구한 바에 따르면 50mm^3 크기의 플라이애쉬 기반 지오폴리머를 30~60°C에서 양생하면 압축강도가 향상되었고, 70~80°C에서는 압축강도가 감소하였다. 또한, Memon et al.(2011)의 연구에서는 100mm^3 크기의 플라이애쉬 기반 지오폴리머를 다양한 온도로 양생하였는데 최대압축강도는 60°C와 70°C에서 나타났고 70°C 이상에서는 압축강도가 저하한다고 보고하였다. 앞의 두 연구에서는 플라이애쉬 기반 지오폴리머의 서로 다른 적정 양생 온도를 나타냈는데, 이는 시험체의 크기 때문이라고 판단된다. 크기가 작은 시험체는 크기가 큰 시험체에 비해서 열에 의한 영향을 많이 받아 혼합물 내부의 과도한 수분 증발이 발생했고 매트릭스 내부에서의 반응을 방해할 수 있다고 보고하고 있다(Chindaprasirt et al. 2007).

양생 온도와 더불어 양생 시간 또한 지오폴리머의 강도 발현에 영향을 미친다. 일반적으로, 강도는 6~24시간 사이에 발현되기 때문에 고온 양생을 1~5시간 정도로 짧게 하면 강도 발현을 할 수 없지만, 양생 온도를 올리면 강도가 더 짧은 시간 내에 발현될 수 있다(Nurruddin et al. 2018; Palomo et al. 1999). 이와 더불어, Satpute Manesh et al.(2012)의 연구에서 플라이애쉬를 사용한 지오폴리머를 60°C, 90°C, 120°C에서 각각 6, 12, 16, 20, 24시간 동안 양생하였다. 결과적으로, 120°C에서 양생한 시험체는 6시간에 최대강도가 발현되었고, 더 낮은 온도에서 양생한 시험체는 6시간 이후의 시간에 최대강도가 발현되었다. 이를 통해, 양생 온도는 지오폴리머의 강도발현에 영향을 미치며, 최대강도 발현시간도 단축시킬 수 있다는 것을 알 수 있다.

4. 내구성에 영향을 미치는 요인

지오폴리머의 내산성, 내염해성, 내황산성, 내백화성과 같은 내구성에 대해서도 종합하였다. 지오폴리머의 내구성은 공극 및 이온의 이동과 관련되어 있으며, 이는 알칼리 용액, 양생 조건, 칼슘과 같은 첨가제에 영향을 받는다. 이전에 다루었던 것처럼, 알칼리 용액의 적정한 농도와 칼슘을 다량 함유한 첨가물은 지오폴리머가 공극이 적고 치밀한 구조를 형성하도록 돕는다. 이와 같이, 매트릭스가 밀실하면 매우 복잡한 구조를 가지기 때문에, 염화물, 황산 및 백화에 대한 저항 성능이 우수하다.

또한, 지오폴리머에 첨가되는 알칼리 용액은 Na^+ 또는 K^+ 같은 금속이온을 가지는데, 금속이온은 지오폴리머의 내구성을 저하시킨다. 이러한 금속이온은 지오폴리머의 적절한 양생으로 이동을 억제할 수 있으며, 이를 통해 지오폴리머의 내구성을 향상시킬 수 있다.

4.1 내산성

지오폴리머를 산에 노출시키면 알루미노실리케이트 구조가 분해되는 해중합 과정이 발생한다. 해중합은 –Si–O–Al–, –Al–O–Al–, –Si–O–Si– 결합이 분해되면서 $Si(OH)_4$를 배출하는 과정이며 양생 방법, 칼슘과 같은 첨가물 및 알칼리 용액에 영향을 받는다(Breck et al. 1984).

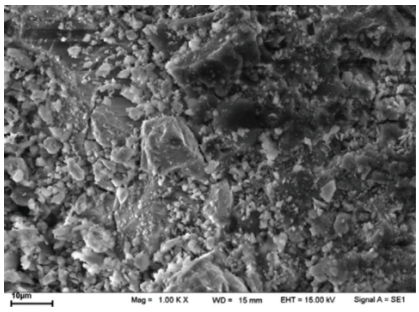
Bakharev(2005)의 연구에서 NaOH & KOH, NaOH 및 Na_2SIO_3 용액을 각각 혼입한 세종류의 플라이애쉬 기반 지오폴리머를 5% CH_3COOH과 H_2SO_4의 산에 5개월간 침지시켰다. 결과적으로 KOH & NaOH과 Na_2SiO_3를 혼입하여 사용한 지오폴리머보다 NaOH를 혼입한 지오폴리머의 내산성이 우수하게 나타냈다. 이는, KOH, NaOH 및 Na_2SiO_3로 활성화된 지오폴리머 시험체에서 관찰된 열화는 알루미노실리케이트 구조의 해중합뿐만 아니라, 제올라이트(결정구조)의 형성과도 연계되어 지오폴리머의 강도 저하를 초래하였다.

Chindaprasirt and Chalee(2014)의 연구에서는 Fig. 4의 SEM 사진에서 나타난 것처럼, NaOH의 농도가 증가할수록 다중축합반응에서 미세한 구조가 형성되는 것을 볼 수 있는데, 이는 염화물의 침투를 줄이고 강도 저하를 억제한다.

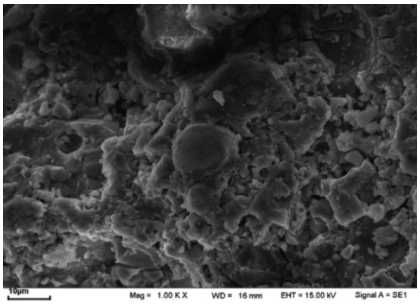
앞서 언급한 연구를 통해, 알칼리 종류 및 농도가 지오폴리머의 내산성에 영향을 미친다는 것을 확인할 수 있다.

4.2 내염해성

지오폴리머는 콘크리트에 비해서 수소이온농도(PH)가 낮기 때문에 염화물에 취약하다. 지오폴리머의 수소이온농도는 알칼리 농도 및 중합반응과 관련이 있는데, 중합반응이 활발할수록 OH^- 이온이 많아져 알칼리 활성제의 대부분을 소모하고 기공 용액의 수소이온농도를 낮춘다.



(a) Fly ash activated with NaOH (8M)



(b) Fly ash activated with NaOH (18M)

Fig. 4. SEM Image(Chindaprasirt et al. 2014)

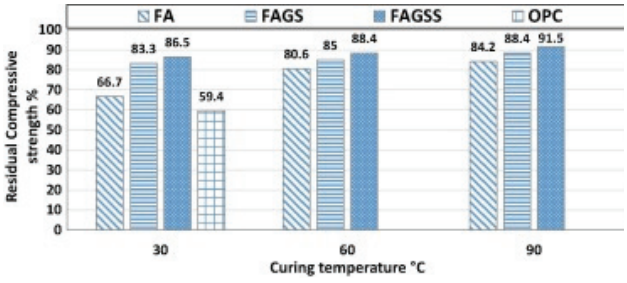


Fig. 5. Effect of binder type on residual compressive strength of geopolymer and OPC mortars cured at various curing temperatures after 48 weeks in magnesium sulfate solution. (Elyamany et al. 2018)

이는, Gunasekara et al.(2017)의 연구에서 0%~5% 농도의 NaCl 용액과 세 가지 종류의 플라이애쉬를 혼합하여 제작된 지오폴리머를 조사하고 일반 포틀랜드 시멘트 콘크리트와 비교한 연구에서 확인할 수 있다. 연구에 따르면, 높은 압축강도를 가진 지오폴리머(압축강도는 중합반응과 비례)가 더 많이 Na^+와 반응하였으며, 이로 인해 압축강도가 높은 시험체의 공극률이 다른 시험체에 비해 낮았다. 앞서 논의한 것과 같이, 지오폴리머의 내구성은 공극률과 관련이 있으며, 알칼리 농도는 매트릭스에서 공극을 감소시키는데 큰 역할을 한다. 이러한 효과는 플라이애쉬 기반 지오폴리머의 알칼리 농도 증가에 따른 공극의 감소가 염화물 침투의 감소로 이루어졌으며 내염해성은 알칼리 농도와 관련이 있다는 것을 알 수 있다(Chindaprasirt and Chalee 2014).

또한, 다량의 칼슘이 함유된 전구물질은 플라이애쉬를 첨가할 때와 마찬가지로 C–S–H 결합과 지오폴리머 겔을 형성하여 밀도가 더 높은 지오폴리머를 생산할 수 있으며, 결과적으로, 지오폴리머의 공극률이 낮아지고 염화물에 대한 저항성이 높아진다(Yang et al. 2014).

4.3 내황산성

지오폴리머가 황산에 노출되면 촉진제 뿐만 아니라 지오폴리머의 혼합물에 따라 –Si–O–Si– 결합이 끊어지면서 균열과 함께 강도 저하가 발생한다. 이러한 현상은 Na^+ 및 K^+와 같은 알칼리 이온들이 시험체 외부로 빠져나오기 위해 매트릭스 내부에서 분산하면서 발생하는 응력에 의해 주로 나타난다.

이러한 이온의 이동은 지오폴리머를 만들 때 사용한 알칼리 종류에 따라 다른 경향을 보인다. Bakharev(2005)의 연구에서, NaOH & KOH, NaOH 및 Na_2SiO_3로 촉진시킨 플라이애쉬 기반 지오폴리머를 5% Na_2SO_4, 5% $MgSO_4$ & 5% (Na_2SO_4 + $MgSO_4$)의 각각 산성용액에 노출시킨 후 내구성에 관해 연구하였다. NaOH를 사용하여 플라이애쉬를 촉진시킨 수준이 Na_2SiO_3와 NaOH + KOH로 촉진시킨 수준보다 황산에 준수한 내구성을 보였다. 이는, NaOH를 혼입하면 알칼리 이온이 흩어지는 것을 방지하여 재료의 내황산성을 가지게 한다. 또한 Na_2SiO_3와 NaOH + KOH로 촉진시킨 지오폴리머보다 NaOH로 촉진시킨 지오폴리머의 압축강도가 높다는 것을 통해서 공극률이 강도와 내구성 모두에 영향을 미치는 것을 알 수 있다.

알칼리와 더불어 재료의 공극률은 양생 온도와 연관이 있는데, 고온 양생을 하면 지오폴리머의 내황산성이 증가하며, 이러한 결과는 다음의 연구에서 확인할 수 있다. Elyamany et al.(2018)의 연구에서, 플라이애쉬, 플라이애쉬+슬래그 및 플라이애쉬+슬래그+실리카흄 기반 지오폴리머 시험체를 30°C, 60°C 및 90°C에서 양생 후, 10% $MgSO_4$에 침지시킨 다음 잔류 압축강도를 평가하였다. 결과적으로, Fig. 5와 같이 높은 온도(90°C)에서 양생을 한 모든 지오폴리머의 잔류 압축강도가 높았다. 이는, 앞서 언급한 것과 같이 다량의 칼슘은 C–S–H 결합와 지오폴리머 겔을 동시에 형성하기 때문에 매트릭스를 더 밀실하게 만들기 때문이다.

한편, Sukmak et al.(2015)의 연구에서는 칼슘이 과도하면 에트린가이트가 형성되면서 C–S–H 결합이 사라지기 때문에 황산마그

네슘에 노출 시, 시험체의 품질이 저하된다는 연구결과도 제시되고 있다.

4.4 내백화성

공극률이 높은 지오폴리머는 백화에 대한 저항 성능이 낮은데 이는, 다공질구조에서 Na^+의 이동이 자유로워 결국 CO_2와 접촉하고, 이는 백색 결정의 형성에 따라 품질 저하가 발생하기 때문이다(Kani and Allahverdi 2009). 이러한 문제는 다량의 칼슘을 함유한 플라이애쉬 기반 지오폴리머가 C-S-H 결합을 형성함으로써 미세한 공극과 함께 재료를 더 밀실하게 만들어 Na^+의 움직임을 억제시켜 해결할 수 있다(Lloyd et al. 2010).

지오폴리머의 백화현상은 전구물질과 촉진제로 사용하는 알칼리 용액에 따라 달라진다. Kani et al.(2012)의 연구에서는 $NaSiO_3$와 NaOH의 두 종류의 알칼리가 백화현상에 미치는 영향에 대해 조사하였다. 결과적으로, $NaSiO_3$로 촉진한 플라이애쉬가 NaOH를 사용한 것보다 Na^+를 더 빨리 침출시켜 백화현상이 가속화되는 것을 확인했다. 또한, 동일한 연구에서 세 개의 서로 다른 플라이애쉬 기반 지오폴리머에 관해서도 연구하였다. 같은 종류와 농도의 알칼리로 촉진한 세종류의 플라이애쉬에서 Na^+가 침출되는 양이 달랐는데, 결과적으로, 고농도의 알칼리가 더 미세한 공극을 형성하지만, 지오폴리머 겔 내의 Na^+ 이온량을 줄여 Na^+의 이동을 자유롭게 하고 재료가 백화에 취약한 특성을 가지게 한다고 보고하였다(Bortnovsky et al. 2008).

뿐만 아니라, 알칼리의 농도가 낮아지면 공극이 많이 생기기 때문에, 재료의 매트릭스 내부의 미세구조에 부정적인 영향을 미칠 수 있다(Kani et al. 2012). 따라서 지오폴리머에 혼합하는 알칼리 농도의 적절한 범위에 관한 연구를 진행할 필요가 있다.

5. 건설자원으로서 활용하기 위한 연구 방향

앞의 절에서 지오폴리머의 압축강도 및 내구성에 영향을 미치는 요인에 대해 고찰하였다. 지오폴리머의 압축강도 및 내구성은 알칼리 용액의 농도 및 종류, 양생 온도 및 시간 등과 같이 다양한 요인에 영향을 받는 것으로 확인되었다.

한편, 건설재료로 사용하기 위해서는 압축강도, 내구성 뿐만 아니라 경제성, 시공 용이성 및 일정한 품질을 확보해야하지만, 지오폴리머는 압축강도 및 내구성에 영향을 미치는 요인이 다양해 위와 같은 요구조건을 만족시키는 것은 한계가 있으며, 이에 관한 연구도 부족한 실정이다.

지오폴리머 제작 시 전구물질, 알칼리 용액 등 여러 가지 재료가 혼입되며, 알칼리 용액의 경우 NaOH가 다른 용액에 비해 효과적인 것으로 보고되고 있지만, 사용 가능한 전구물질은 다양하며, 전구물질 채용에 따른 지오폴리머 생산단가도 다르다. 따라서, 건설재료로 활용하기 위해서는 지오폴리머의 제작단가에 대한 정밀한 비교・분석을 통해 경제적인 측면에 대한 연구가 진행되어야 할 것이다.

또한, 지오폴리머는 영향을 받는 요인이 다양하기 때문에 일정한 품질을 도출하기 위해서, 수많은 실험 및 시뮬레이션이 진행되어야 하며, 시험체 크기는 양생 조건에 많은 영향을 받기 때문에 실부재 크기의 시험체에 대한 Mock-up 테스트를 통해 이러한 요인에 대한 영향을 감소시켜야 한다.

지오폴리머는 고온에서 양생이 진행되야 하기 때문에, 공장에서 부재를 생산하는 프리캐스트 공법으로 생산 후 현장에서 조립하는 사례가 있으며, 이를 통해 산업부산물을 건설재료로 활용하기 위해 연구가 지속되어야 할 것으로 판단된다.

6. 결 론

본 연구에서는 탄소 배출량을 저감시키기 위해 콘크리트의 대체재로 주목받고 있는 지오폴리머의 압축강도와 내구성에 영향을 미치는 요인에 대해 고찰하였다.

1. 지오폴리머의 압축강도는 알칼리 종류 및 농도, Si-Al 비율, 양생 조건과 같이 다양한 요인에 영향을 받으며, 연구를 통해 요인들의 적절한 범위에 대한 고려가 필요하다.
2. 지오폴리머에 미세한 구조가 형성되어 매트릭스가 밀실하면, 매트릭스 내부에 있는 이온의 움직임이 감소되어 내구성이 향상되는데, 특히 NaOH가 높은 내구성능을 보였다.
3. 지오폴리머의 활성화를 위해 위와 같은 연구들을 바탕으로 지속적인 상용화 연구가 진행되어야 할 것으로 생각되며, 이를 통해 탄소저감형 친환경 건설재료로써 역할을 할 수 있을 것으로 보인다.

Conflicts of interest

None.

감사의 글

이 논문은 2015년도 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구입니다(No.2015R1A5A1037548).

References

Abdul Rahim, R.H., Rahmiati, T., Azizli, K.A., Man, Z., Nuruddin, M.F., Ismail, L. (2015). Comparison of using NaOH and KOH activated fly ash–based geopolymer on the mechanical properties, Materials Science Forum, **803**, 179–184.

Al Bakria, A.M., Kamarudin, H., BinHussain, M., Nizar, I.K., Zarina, Y., Rafiza, A.R. (2011). The effect of curing temperature on physical and chemical properties of geopolymers, Physics Procedia, **22**, 286–291.

Bakharev, T. (2005). Durability of geopolymer materials in sodium and magnesium sulfate solutions, Cement and Concrete Research, **35(6)**, 1233–1246.

Bortnovsky, O., Dědeček, J., Tvarůžková, Z., Sobalík, Z., Šubrt, J. (2008). Metal ions as probes for characterization of geopolymer materials, Journal of the American Ceramic Society, **91(9)**, 3052–3057.

Breck, D.W., Breck, D.W. (1973). Zeolite molecular sieves: structure, chemistry, and use, John Wiley & Sons.

Chindaprasirt, P., Chalee, W. (2014). Effect of sodium hydroxide concentration on chloride penetration and steel corrosion of fly ash–based geopolymer concrete under marine site, Construction and Building Materials, **63**, 303–310.

Chindaprasirt, P., Chareerat, T., Sirivivatnanon, V. (2007). Workability and strength of coarse high calcium fly ash geopolymer, Cement and Concrete Composites, **29(3)**, 224–229.

Davidovits, J. (1991). Geopolymers: inorganic polymeric new materials, Journal of Thermal Analysis and Calorimetry, **37(8)**, 1633–1656.

Davidovits, J. (2002). Years of successes and failures in geopolymer applications. Market trends and potential breakthroughs, Geopolymer 2002 Conference Saint-Quentin, France; Melbourne, Australia: Geopolymer Institute, **28**, 29.

Davidovits, J. (2011). Calcium based geopolymer, Geopolymer Chemistry and Applications, 3rd ed., Geopolymer Institute, Saint Quentin, France, 201–244.

Diaz, E.I., Allouche, E.N., Eklund, S. (2010). Factors affecting the suitability of fly ash as source material for geopolymers, Fuel, **89(5)**, 992–996.

Duxson, P.S.W.M., Mallicoat, S.W., Lukey, G.C., Kriven, W.M., van Deventer, J.S. (2007). The effect of alkali and Si/Al ratio on the development of mechanical properties of metakaolin–based geopolymers, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, **292(1)**, 8–20.

Elyamany, H.E., Abd Elmoaty, M., Elshaboury, A.M. (2018). Magnesium sulfate resistance of geopolymer mortar, Construction and Building Materials, **184**, 111–127.

Fang, G., Ho, W.K., Tu, W., Zhang, M. (2018). Workability and mechanical properties of alkali–activated fly ash–slag concrete cured at ambient temperature, Construction and Building Materials, **172**, 476–487.

Gunasekara, C., Bhuiyan, S., Law, D., Setunge, S., Ward, L. (2017). Corrosion resistance in different fly ash based geopolymer concretes, HPC/CIC Tromsø; Norway.

He, J., Jie, Y., Zhang, J., Yu, Y., Zhang, G. (2013). Synthesis and characterization of red mud and rice husk ash–based geopolymer composites, Cement and Concrete Composites, **37**, 108–118.

Jamieson, E., McLellan, B., Van Riessen, A., Nikraz, H. (2015). Comparison of embodied energies of ordinary portland cement with bayer–derived geopolymer products, Journal of Cleaner Production, **99**, 112–118.

Kani, E.N., Allahverdi, A. (2009). Effect of chemical composition on basic engineering properties of inorganic polymeric binder based on natural pozzolan, Ceramics–Silikaty, **53(3)**, 195–204.

Kani, E.N., Allahverdi, A., Provis, J.L. (2012). Efflorescence control in geopolymer binders based on natural pozzolan, Cement and Concrete Composites, **34(1)**, 25–33.

Leung, C.K., Pheeraphan, T. (1995). Very high early strength of microwave cured concrete, Cement and Concrete Research, **25(1)**, 136–146.

Li, Q., Sun, Z., Tao, D., Xu, Y., Li, P., Cui, H., Zhai, J. (2013). Immobilization of simulated radionuclide 133Cs+ by fly ash–based geopolymer, Journal of Hazardous Materials, **262**, 325–331.

Lloyd, R.R., Provis, J.L., Van Deventer, J.S. (2010). Pore solution composition and alkali diffusion in inorganic polymer cement, Cement and Concrete Research, **40(9)**, 1386–1392.

Manz, O.E. (1999). Coal fly ash: a retrospective and future look, Fuel, **78(2)**, 133–136.

Memon, F.A., Nuruddin, M.F., Demie, S., Shafiq, N. (2011). Effect

of curing conditions on strength of fly ash-based self-compacting geopolymer concrete, International Journal of Civil and Environmental Engineering, **5(8)**, 342-345.

Naik, T.R. (2008). Sustainability of concrete construction, Practice Periodical on Structural Design and Construction, **13(2)**, 98-103.

Naik, T.R., Kraus, R.N. (1999). The role of flowable slurry in sustainable developments in civil engineering, Materials and Construction: Exploring the Connection, ASCE, 826-834.

Nazari, A., Khalaj, G., Riahi, S. (2013). Retracted Aricle: ANFIS-based prediction of the compressive strength of geopolymers with seeded fly ash and rice husk-bark ash, Neural Computing and Applications, **22(3)**, 689-701.

Neupane, G., Donahoe, R.J. (2013). Leachability of elements in alkaline and acidic coal fly ash samples during batch and column leaching tests, Fuel, **104**, 758-770.

Neupane, K. (2016). Fly ash and GGBFS based powder-activated geopolymer binders: a viable sustainable alternative of portland cement in concrete industry, Mechanics of Materials, **103**, 110-122.

Nomura, Y., Fujiwara, K., Terada, A., Nakai, S., Hosomi, M. (2010). Prevention of lead leaching from fly ashes by mechanochemical treatment, Waste Management, **30(7)**, 1290-1295.

Nurruddin, M.F., Sani, H., Mohammed, B.S., Shaaban, I. (2018). Methods of curing geopolymer concrete: a review, International Journal of Advanced and Applied Sciences, **5(1)**, 31-36.

Ouellet-Plamondon, C., Habert, G. (2015). Life cycle assessment(LCA) of alkali-activated cements and concretes, Handbook of Alkali-Activated Cements, Mortars and Concretes, Woodhead Publishing, 663-686.

Palomo, A., Grutzeck, M.W., Blanco, M.T. (1999). Alkali-activated fly ashes: a cement for the future, Cement and Concrete Research, **29(8)**, 1323-1329.

Panagiotopoulou, C., Kontori, E., Perraki, T., Kakali, G. (2007). Dissolution of aluminosilicate minerals and by-products in alkaline media, Journal of Materials Science, **42(9)**, 2967-2973.

Patankar, S.V., Ghugal, Y.M., Jamkar, S.S. (2014). Effect of concentration of sodium hydroxide and degree of heat curing on fly ash-based geopolymer mortar, Indian Journal of Materials Science, **2014**.

Purbasari, A., Samadhi, T.W., Bindar, Y. (2018). The effect of alkaline activator types on strength and microstructural properties of geopolymer from co-combustion residuals of bamboo and kaolin, Indonesian Journal of Chemistry, **18(3)**, 397-402.

Rashad, A.M., Zeedan, S.R. (2011). The effect of activator concentration on the residual strength of alkali-activated fly ash pastes subjected to thermal load, Construction and Building Materials, **25(7)**, 3098-3107.

Sasui, S., Kim, G., Nam, J., van Riessen, A., Hadzima-Nyarko, M. (2021). Effects of waste glass as a sand replacement on the strength and durability of fly ash/GGBS based alkali activated mortar, Ceramics International.

Satpute Manesh, B., Wakchaure Madhukar, R., Patankar Subhash, V. (2012). Effect of duration and temperature of curing on compressive strength of geopolymer concrete, Int. J. Eng. Innov. Technol, **1(5)**, 152-155.

Schmücker, M., MacKenzie, K.J. (2005). Microstructure of sodium polysialate siloxo geopolymer, Ceramics International, **31(3)**, 433-437.

Škvára, F., Kopecký, L., Nemecek, J., Bittnar, Z.D.E.N.Ì.K. (2006). Microstructure of geopolymer materials based on fly ash, Ceramics-Silikaty, **50(4)**, 208-215.

Somna, K., Jaturapitakkul, C., Kajitvichyanukul, P., Chindaprasirt, P. (2011). NaOH-activated ground fly ash geopolymer cured at ambient temperature, Fuel, **90(6)**, 2118-2124.

Sukmak, P., De Silva, P., Horpibulsuk, S., Chindaprasirt, P. (2015). Sulfate resistance of clay-portland cement and clay high-calcium fly ash geopolymer, Journal of Materials in Civil Engineering, **27(5)**, 04014158.

Xu, H., Van Deventer, J.S.J. (2000). The geopolymerisation of alumino-silicate minerals, International Journal of Mineral Processing, **59(3)**, 247-266.

Yahya, Z., Abdullah, M.M.A.B., Hussin, K., Ismail, K.N., Razak, R.A., Sandu, A.V. (2015). Effect of solids-to-liquids, Na_2SiO_3-to-NaOH and curing temperature on the palm oil boiler ash(Si+ Ca) geopolymerisation system, Materials, **8(5)**, 2227-2242.

Yang, T., Yao, X., Zhang, Z. (2014). Geopolymer prepared with high-magnesium nickel slag: characterization of properties and microstructure, Construction and Building Materials, **59**, 188-194.

Yang, T., Yao, X., Zhang, Z., Wang, H. (2012). Mechanical property and structure of alkali-activated fly ash and slag blends, Journal of Sustainable Cement-Based Materials, **1(4)**, 167-178.

Yip, C.K., Lukey, G.C., Van Deventer, J.S. (2005). The coexistence of geopolymeric gel and calcium silicate hydrate at the early stage of alkaline activation, Cement and Concrete Research, **35(9)**, 1688-1697.

Zhang, M., El-Korchi, T., Zhang, G., Liang, J., Tao, M. (2014). Synthesis factors affecting mechanical properties,

microstructure, and chemical composition of red mud-fly ash based geopolymers, Fuel, **134**, 315–325.
Zhang, Z.H., Zhu, H.J., Zhou, C.H., Wang, H. (2016). Geopolymer from kaolin in China: an overview, Applied Clay Science, **119**, 31–41.

지오폴리머의 강도와 내구성에 영향을 미치는 요인에 대한 고찰

이산화탄소 및 온실가스의 배출, 과도한 에너지 소비 및 천연자원의 고갈을 막기 위해 콘크리트의 대체재를 찾는 것은 건설업의 해결과제이다. 이러한 문제를 해결하기 위해, 콘크리트보다 환경친화적인 지오폴리머가 주목을 받고 있으며, 실제 시공을 목적으로 강도 및 내구성에 대한 연구가 진행되고 있다. 일반적으로, 지오폴리머의 강도 및 내구성은 알칼리 용액의 종류 및 농도, 전구물질, 양생 온도 및 시간 등 여러 요인에 따라 달라지며, 이는 지오폴리머의 강도와 내구성에 영향을 미치는 화학조성 및 미세구조에 큰 영향을 미친다. 기존의 연구에서 최적의 알칼리 용액의 종류 및 농도, 전구물질, 양생 온도 및 시간을 통하여 지오폴리머의 압축강도 및 내구성이 향상되는 것을 확인하였으며, 본 연구에서는 과거의 연구 결과를 검토하고 이러한 요인이 지오폴리머의 압축강도 및 내구성에 미치는 영향을 체계적으로 종합하였다.