



In-situ 탄산화 적용 모르타르의 물리적 특성 검토

김진성* · 남성영 · 김춘식 · 조성현

<한일시멘트(주)>

1. 서 론

전 세계적으로 산업기술발전과 더불어 개인, 회사 및 단체 내에서 배출되는 CO₂를 재활용하여 실질적인 배출량 “Zero”를 목표로 하는 다양한 정책들을 제시하고 있다. 특히 시멘트 산업의 경우, 시멘트 생산 시, 석회석, 점토 및 실리카 등의 원료를 유연탄 및 대체원료를 이용하여 1450°C에서 소성하게 되면 석회석의 탈탄산 및 연료에 따른 많은 양의 CO₂를 배출하게 되며, 보통포틀랜드시멘트(Ordinary Portland Cement, OPC)는 1톤당 약 0.8톤의 CO₂를 배출하는 것으로 알려져 있어, 이에 대한 CO₂ 감축에 대한 구체적인 대응방안이 필요한 실정이다.¹⁾

In-situ 탄산화 기술은 콘크리트/모르타르 2차제품 등 시멘트 기반 건설재료 제조과정에서 CO₂를 주입하여 시멘트 수화과정에서 용출되는 Ca²⁺이온과 CO₂의 탄산화 반응을 통해 CaCO₃의 형태로 CO₂를 영구 고정화시키는 광물탄산화 기술로써, 미국, 캐나다 등 선진국에서 기술 개발을 통해 상용화를 현재 진행 중에 있다.

한편, 현재까지 국내의 시멘트 기반 건설 및 제조 산업의 In-situ 탄산화 기술 개발에 관련한 연구 사례는 미비하며, 대부분 기술적 불확실성이 높거나 생산단계 및 소비단계를 명확히 구분치 않아 현장 적용에 대한 효율성이 떨어지는 실정이다. 이에 세계적인 탄소중립과 관련하여 국내 환경변화에 발맞춘 In-situ 탄산화 기술 개발을 기반으로 CO₂ 배출량 감축 목표를 설정하고, 시멘트 및 콘크리트 제품의 CO₂ 배출량 평가 모델 개발 등의 기술 개발을 통해 글로벌 탄소중립에 부합할 수 있는 환경 우수성 검증이 필요할 것으로 판단된다.

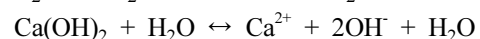
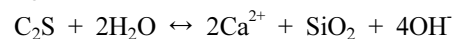
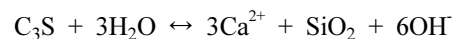
따라서 본 연구에서는 온실가스 감축기술 강화 및 시멘트 기반 건설 산업의 경쟁력 확보를 위한 In-situ 탄산화 기술의 적용 가능성을 검토하고자하며, 이를 위한 기초연구로써 현재 국내 건설현장에서 시공되고 있는 바닥용 모르타르의 범위에서 CO₂를 In-situ 공법으로 적용한 모르타르의 작업성 및 압축강도 등의 기초검토를 진행하였다.

2. 이론적 고찰

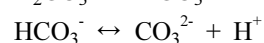
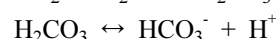
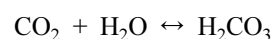
Equation (1~3)에 시멘트의 수화반응 과정에서 용출되는 Ca²⁺이온과 In-situ CO₂ 주입 시, 나타나는 탄산화 물성발현 메커니즘을 나타내었다. 시멘트의 수화과정에서 형성되는 Alite (C₃S) 및 Belite (C₂S) 등이 물과 반응하여 Ca²⁺이온을 용출하게 되며, 이 때, 주입된 CO₂와 반응하여 CaCO₃의 형태로 CO₂를 격리하게 되는데, In-situ 탄산화 기술을 통한 최종 결과생성물의 경우, 기존의 보통포틀랜드시멘트에 존재하는 C-S-H, Ettringite, CaCO₃ 등과 유사한 형태로 형성되어, 보통포틀랜드시멘트와 비교하여 동등 이상의 물성확보가 가능할 것으로 판단된다.

캐나다의 Carboncure Technology Inc에서는 산업배출 배가스에서 포집한 CO₂를 fresh 콘크리트에 주입하여 콘크리트 및 레미콘 물성에 영향을 주지 않고 산업 배출 CO₂의 저감을 실현할 수 있는 기술을 개발하였으며, 혼합과정에서 CO₂를 주입하면서 재령별 콘크리트의 강도발현 정도를 증가시켜 콘크리트 혼합에 사용되는 단위시멘트 사용량을 약 5% 정도 저감시킬 수 있었다.^{2,3)} 또한 캐나다의 Carbicrete에서는 시멘트 대신 슬래그를 사용하고, CO₂를 주입하여 CMUs(Concrete Masonry Units)당 약 3kg의 CO₂를 저감할 수 있는 블록을 상용화한 사례가 보고되고 있다.⁴⁾

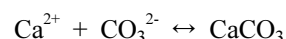
[Ca²⁺ Supply] Equation (1)



[Ca²⁺ Supply] Equation (2)



[CO₂ Storage] Equation (3)



또한 앞서 언급했듯이 대기압 조건에서 시멘트 수화반응 중 용출된 Ca^{2+} 이온과 CO_2 가 반응하여 $CaCO_3$ 를 형성하는 반응으로 탄산화 반응을 위한 별도의 첨가물질의 혼합 및 전처리 공정이 요구되지 않는 등의 별도의 전·후처리 공정 없이 기존의 콘크리트 2차 제품을 비롯하여 레미콘 등의 제조공정에 직접 적용이 가능하므로, 현장 맞춤형 탄산화 기술로써 산업 적용성 또한 우수하다.⁵⁾ 또한 추가 공정에 따른 에너지 발생 및 탄산화 반응 생성 물질에 대한 후처리 등과 관련한 경제적 및 환경적 손실이 낮아 추후 산업 실증 측면에 있어 유리하며, 기존의 산업시스템을 기반으로 활용할 수 있어, In-situ 탄산화 기술 적용 시, 기술제어에 대한 안정성 확보가 가능하다.

3. 실험계획 및 방법

3.1. 실험재료

골재는 건조 내륙사를 이용하였으며, 강도보강제로써의 성능 발현을 위해 입도사이즈별로 세사(S1, 0.15~0.71 mm), 중사(S2, 0.71~2.00 mm) 및 왕사(S3, 2.00~4.75 mm)로 구분하여 사용하였다. 바닥용 모르타르 배합의 결합재(Binder)는 현재 현장에서 유통되고 있는 H사의 1종 보통 포틀랜드시멘트(OPC)를 사용하였으며, OPC의 비중 및 분말도는 각각 3.15 및 $3,658 \text{ cm}^3/\text{g}$ 이다. 채움재(Filler)는 석회석 미분말 및 H사의 보일러 연소로 내 발생되는 탈황석고를 사용하였다. 또한 결합재의 첨가량에 따른 채움 작업성 및 유동성 향상을 위해 Polycarbonate (PC계) 유동화제(superplasticized)를 외할 첨가하였다.

3.2. 실험계획 및 방법

Table 1에 실험계획을 나타내었다. 본 연구에서는 현재 현장에서 상용화되고 있는 바닥용 모르타르 배합 설계를 적용하였다. 이 때, 앞서 언급한 Carboncure Technology Inc의 경우, 레미콘 기준 1 m^3 당 CO_2 의 고정화량을 0.4 kg/m^3 수준으로 제시하였는데, 본 연구에서는 이를 바탕으로 바닥용 모르타르 배합 2 kg 기준 배합설계 시, CO_2 의 주입 유량 및 총 주입량의 범위를 설정하기 위한 예비실험을 진행하였으며, 실험 결과를 바탕으로 CO_2 의 주입 방식을 주입 유량 10 L/min, 주입 시간 2초 및 4초로 설정하여, 그에 따른 결합재 및 채움재의 첨가 비율을 비교군으로 검토하였다.

또한 바닥용 모르타르 배합의 현장 시공 시, 배합, 혼합 및 압송 등을 위해 Flow는 $200 \pm 10 \text{ mm}$ 를 기준으로 물-결합재비(W/R)를 17%로 설정하였다. 원료들의 배합은 KS L ISO 679에 의거한 모르타르 혼합기를 활용하였으며, 배합속도를 자전($140 \pm 5 \text{ rpm}$) 및 공전($62 \pm 5 \text{ rpm}$)의 저속으로 설정하여, 30초 혼합 후, 정치하여 CO_2 를 주입하였으며, 이후 30초 재혼합하였다.

4. 단위시멘트량 감축에 따른 In-situ 탄산화 적용 모르타르 평가

4.1 단위용적중량 및 Flow 특성 평가

Table 2에 단위시멘트 감축 및 CO_2 주입 방식에 따른 단위용적중량(g/L) 및 Flow(mm) 측정결과를 나타내었다. 본 연구에서는 In-situ 탄산화 기술을 적용한 바닥용 모르타르 배합의 특성 평가를 위해 단위용적중량 및 Flow에 대한 검토를 실시하였으며, Flow의 경우에는 모르타

Table 1. Experimental Plan

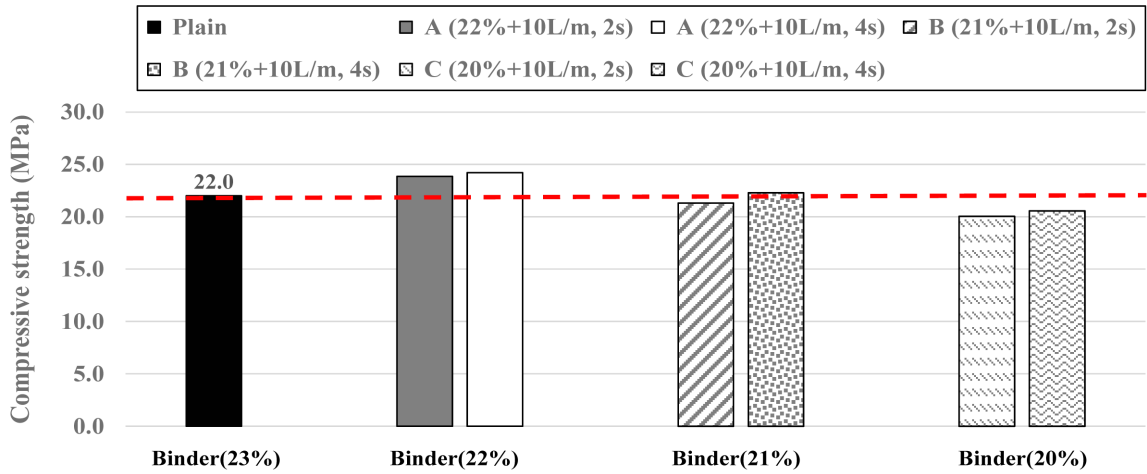
| Type. | Aggregate (%) | Binder (wt%) | Filler (wt%) | W/R (%) | CO_2 injection method | Curing Condition | Evaluation Items |
|-------|---------------|--------------|--------------|---------|-------------------------|------------------|---|
| Plain | 73.5 | 23 | 3.5 | 17.0 | 10 L/min (2s / 4s) | 20°C RH 60% | [Unit weight] [Flow (0, 10 min)] [Compressive strength according to unit cement reduction (3, 7, 28 days)] |
| A | | 22 | 4.5 | | | | |
| B | | 21 | 5.5 | | | | |
| C | | 20 | 6.5 | | | | |

Table 2. Unit weight and Flow results for unit cement reduction ratio and CO_2 Injection method

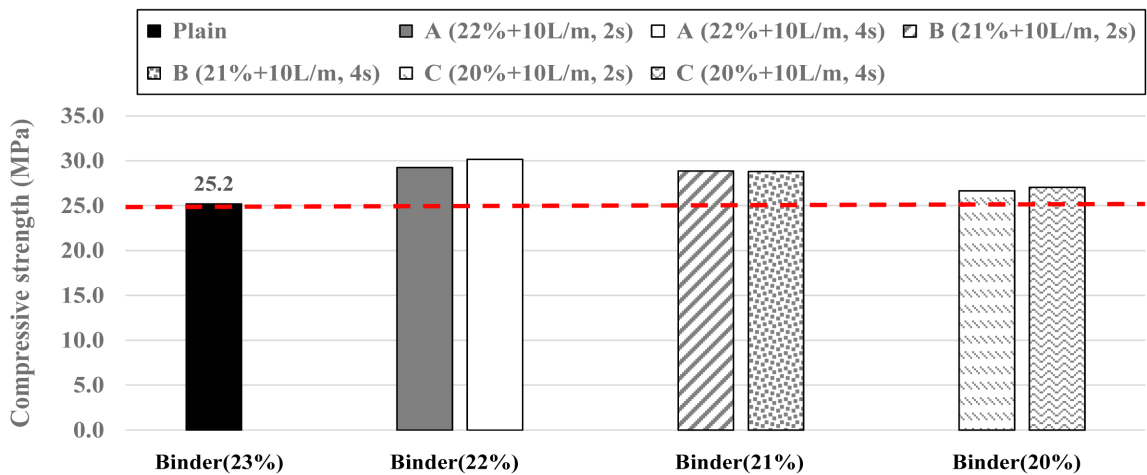
| Type. | | OPC (wt%) | CO_2 Injection method | | Unit weight (g/L) | Flow (mm) | |
|-------|----------------|-----------|-------------------------|----------|-------------------|-----------|--------|
| | | | Flow (L/min) | Time (s) | | 0 min | 10 min |
| Plain | | 23 | - | - | 2,175 | 208 | 154 |
| A | 22%+10 L/m, 2s | 22 | 10 | 2 | 2,138 | 209 | 151 |
| | 22%+10 L/m, 4s | | | 4 | 2,155 | 208 | 160 |
| B | 21%+10 L/m, 2s | 21 | | 2 | 2,168 | 205 | 163 |
| | 21%+10 L/m, 4s | | | 4 | 2,159 | 210 | 161 |
| C | 20%+10 L/m, 2s | 20 | | 2 | 2,080 | 204 | 157 |
| | 20%+10 L/m, 4s | | | 4 | 2,138 | 203 | 160 |

르 시공 시, 배합, 혼합 및 압송 등을 고려하여 200±10 mm 를 기준으로 설정하고, 10분 이후의 Loss까지 측정하였다. 실험결과, 기존에 현장에서 활용되고 있는 Plain의 단위용적중량 및 초기 Flow는 각각 2,175 g/L 및 208 mm 로 측정되었으며, 단위시멘트 감축 및 CO₂ 주입에 따른

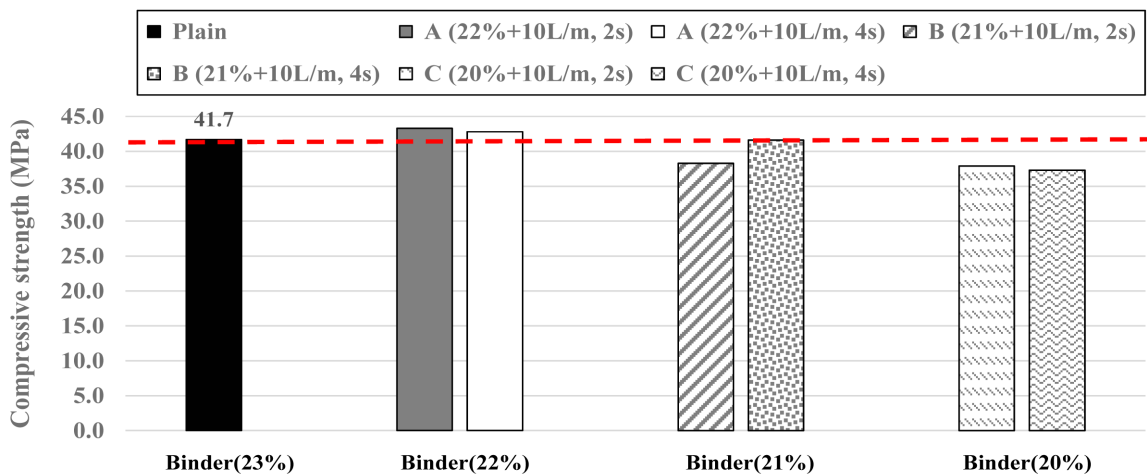
타 배합들의 경우에도 Plain 대비 동등한 수준의 결과를 보였다. 따라서 바닥용 모르타르 배합의 작업성 측면에서 In-situ 탄산화 적용을 통한 단위시멘트 감축이 가능 할 것으로 판단된다.



(a) Compressive strength results at 3 days



(b) Compressive strength results at 7 days



(c) Compressive strength results at 28 days

Fig. 1. Compressive strength results for unit cement reduction ratio and CO₂ Injection method

4.2 압축강도 특성 평가

Fig. 1에 단위시멘트 감축 및 CO₂ 주입 방식에 따른 압축강도 측정결과를 나타내었다. 먼저 CO₂ 주입 유량 및 주입 시간이 각각 10 L/min 및 4 s일 경우, 동등 단위시멘트량 대비 재령별 압축강도가 다소 높게 측정되었다. 이는 시멘트 수화반응 중 용출되는 Ca²⁺ 이온과 반응하여 CaCO₃를 형성하기 위한 CO₂를 포함하여 반응하지 못하고 상온으로 배출되는 CO₂의 잔량을 고려하였을 때, 고강도 바닥용 모르타르 2 kg 배합을 기준으로 적정 CO₂ 주입 수준을 설정할 수 있을 것으로 판단된다.

단위시멘트량을 각각 1, 2, 3% 감축시켜 압축강도를 측정된 결과, 단위시멘트량이 각각 1, 2% 감축시킨 배합의 경우, 재령별 Plain 대비 동등 이상의 수준을 보였다. 이는 앞서 언급했듯이 시멘트 수화반응 중 용출되는 Ca²⁺ 이온과 주입된 CO₂가 반응하면서 CaCO₃이 형성되는데, 이 때, 형성된 CaCO₃의 입자 수준(Particle size)이 나노(Nano size) 수준으로 형성되어, 결합재 내부의 약 10²~10⁵nm 수준의 미세 공극에 영향을 미쳐 물리적인 강도 발현에 기인한 것으로 사료되며, 추후 이를 위한 입도 분석, 주사전자현미경(SEM) 관찰 및 기공률(Porosimeter) 분석 등의 미세 구조 분석이 수행되어야 할 것으로 판단된다.

한편, 단위시멘트량을 3% 감축시킨 배합의 경우, 재령별 Plain 대비 동등 이하의 수준을 보였는데, 이는 과도한 결합재 감축으로 인해 주입되는 CO₂와 반응하기 위한 시멘트 수화반응 과정에서 용출되는 Ca²⁺ 이온이 다소 부족한 것으로 사료되며, 추후 In-situ 탄산화 적용 과정에서 원가절감 등을 고려한 결합재 사용량 감축을 위해 In-situ 탄산화 적용 시, CO₂와의 반응성을 높인 특수 시멘트에 대한 개발 연구가 필요할 것으로 판단된다.

5. 결 론

본 연구에서는 현재 건설 현장에서 적용되고 있는 바닥용 모르타르 배합의 범위에서 In-situ 탄산화 기술의 적용 가능성을 확인하고자, CO₂를 주입하여 단위시멘트량의 감축에 따른 제품의 품질검토를 실시하였다.

1. CO₂의 주입 방식 및 단위시멘트량 감축에 따른 단위용적중량(g/L) 및 Flow(mm) 측정결과, 기존에 활용 중

인 배합 대비 동등 수준을 보여, 바닥용 모르타르 배합의 작업성 측면에서 In-situ 탄산화 적용이 가능할 것으로 판단된다.

2. 시멘트의 수화반응 중 용출되는 Ca²⁺ 이온과 CO₂가 반응하면서 CaCO₃가 형성되는데, 이 때, CaCO₃ 입자 수준이 나노 사이즈 수준으로 형성되어, 약 10²~10⁵nm 수준의 미세 공극에 영향을 끼쳐 제품의 강도 발현에 기여한 것으로 사료된다.

3. 따라서 바닥용 모르타르 범위에서 In-situ 탄산화 기술을 적용할 경우, 약 1~2%의 Binder 감축이 가능할 것으로 판단되며, 본 연구결과는 현재 국내 건설현장에서 활용중인 바닥용 모르타르 범위에서 CO₂를 적용하기 위한 최적배합 선정 및 나아가 온실가스 감축기술 강화 및 시멘트 기반 건설 산업의 경쟁력 확보를 위한 한국형 In-situ 탄산화 기술 개발을 위한 기초자료로써 활용이 가능할 것으로 판단된다.

<감사의글>

본 연구는 산업통상자원부(MOTIE)와 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다. (No. 20212010200080)

<참고문헌>

1. 김상호, & 황준필. (2013). 시멘트 생산과정에 따른 CaO 함량과 CO₂ 의 발생량. Journal of the Korea Concrete Institute, 25(4), 365-370.
2. Sandeep, B. G. (2021). Reduction of greenhouse gas emission by carbon trapping concrete using carboncure technology. Applied Journal of Environmental Engineering Science, 7(3), 7-3.
3. Rissman, J. (2018). Cement's role in a carbon-neutral future. Energy innovation.
4. Doty, L., Jacquez, M., Mahale, N., Nelson, T., Odunowo, T., & Paladino, B. Evaluating Strategies and Scenarios for Carbon Neutrality for the City of Palo Alto.
5. Jang, J. G., Kim, G. M., Park, S. M., & Lee, H. K. (2016). Carbon Dioxide Utilization and Sequestration by Carbonation Curing of Cement-based Materials. Magazine of the Korea Concrete Institute, 28(4), 40-45.