

방사성 폐기물 처리용 나노구조체 제조를 위한 환경친화적 주형합성방법에 관한 연구

김종윤, 윤석본, 최병선, 연제원, 송규석, 유종성*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*고려대학교, 충청남도 연기군 조치원읍 세종로 2511

kjy@kaeri.re.kr

1. 서론

1992년 계면활성제를 이용한 주형합성법에 의한 메조다공성 실리카 나노 구조체의 합성기술이 발표된 이후, 다양한 구조와 화학적 특성을 갖는 메조다공성 물질의 합성에 관한 다양한 연구가 이루어져 왔다.[1-2] 메조다공성 물질은 기공의 크기가 2nm 이상이기 때문에, 2nm 이상의 큰 외부물질을 기공 내부로 도입할 수 있다. 하지만, 기공 크기가 2nm 이하인 마이크로다공성 물질의 경우 기공의 입구를 막아 실제 응용에서 활용가능한 유효 표면적이 크게 낮아질 수 있다. 따라서, 그동안 메조다공성 물질들의 기공 모양, 크기 및 크기 분포를 제어함으로써 촉매, 필터, 연료전지, 태양전지, 광결정, 진단 조영제, 약물전달체 등 다양한 분야에서 획기적인 성능 향상에 기여해 왔다.[3-7] 또한, 방사성 폐기물 처리용 소재로서 내부 표면을 방사성 물질에 대해 친화력이 강한 유기물질로 개질한 실리카 나노구조체와 다공성 탄소 나노구조체에 관한 연구가 이루어져 왔다.

하지만, 일반적인 메조다공성 탄소의 주형합성법에서는 주형물질로 사용한 메조다공성 실리카를 에칭 용매를 사용하여 제거하는 공정이 포함되어 있다. 따라서, 본 연구에서는 경제성, 환경오염 등의 심각한 문제를 야기시킬 수 있는 주형물질을 재활용할 수 있는 환경친화적 합성공정으로서 실리카 재결정 방법을 사용하였다.

2. 본론

2.1 시약 및 합성 방법

Fig. 1에 개략적인 실리카/탄소 나노복합체의 제조 공정을 나타내었다. 4mL의 암모니아, 100mL의 에탄올, 8mL의 증류수가 포함된 혼합물에 6mL의 테트라에톡시실란(TEOS)을 투입하고 실온에서 6시간 혼합함으로써 실리카 코어를 포함하는 혼탁액을 제조한다. 실리카 코어를 포함하는 상기 혼탁액에 5mL의 TEOS와 2mL의 옥타데실트리메톡시실란(C18-TMS)

혼합액을 투입하고 실온에서 5시간 동안 강렬하게 혼합하고, 원심분리 후, 건조한 다음, 823K의 산소분위기 회화로에서 7시간 처리하여 코어-쉘 구조의 메조다공성 실리카를 제조한다.

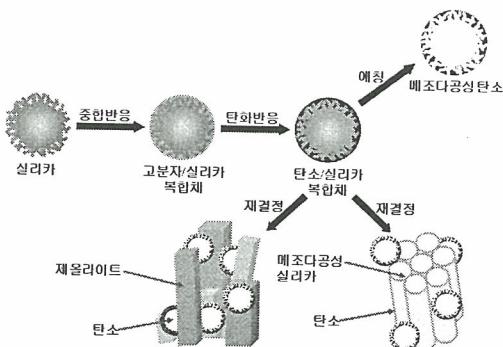


Fig. 1. Schematic diagram of environment-friendly synthetic route to the silica-carbon composite.

메조기공 내에서의 고분자 합성을 위하여 알루미늄이 침지되어 있는 코어-쉘 실리카를 이용하여 폐플 레진-실리카 복합체를 제조한다. 폐플 레진-실리카 복합체는 1173K 질소 분위기의 관형 회화로에서 7시간 처리하여 실리카-탄소 복합체를 제조한다.

실리카-탄소 복합체는 재결정 방법에 따라 마이크로다공성 제올라이트-탄소, 혹은 메조다공성 실리카-탄소 복합체를 제조할 수 있다. 테트라프로필암모늄계 화합물을 주형물질로 사용하면, 마이크로다공성 제올라이트와 메조다공성 탄소로 이루어져 있는 나노복합체를 제조할 수 있고, 헥사데실트리메틸암모늄계 화합물을 주형물질로 사용하면, 메조다공성 실리카와 메조다공성 탄소로 이루어져 있는 나노복합체를 제조할 수 있다.

2.2 물성 분석 방법

엑스선 회절분석기(Rigaku Miniflex diffractometer)를 이용하여 제올라이트 입자와 규칙적 기공의 결정성을 조사하였다. 질소흡탈착분석기(Micromeritics

ASAP 2000)를 이용하여 표면적, 기공크기 및 크기 분포를 분석하였다. 입자의 모폴로지 분석을 위하여 투파전자현미경(EM 912 Omega)과 주사전자현미경(JEOL JSM-840A microscope)을 이용하였다.

2.3 실험 결과

재결정 방법에 의하여 합성한 제올라이트-탄소 나노복합체의 전자현미경 사진을 Fig. 2에 나타내었다. 코어-쉘 구조의 메조다공성 실리카 주형물질을 사용하였기 때문에 결과적으로 합성된 메조다공성 탄소의 모양은 구형으로 이루어져 있다. 고분자-실리카 복합체에서 실리카 부분이 용해작용에 의하여 녹아 나오면서 탄소 주위의 아주 밀접한 위치에서 재결정 조건에 따라 제올라이트 혹은 규칙적 메조다공성 실리카를 형성하였다. 실리카 재결정 방법에 의해 제조한 실리카-탄소 나노 복합체는 물리적 혼합에 의한 실리카-탄소 복합체보다 실리카와 탄소 사이의 혼합 균일성이 우수하기 때문에 기체흡착 성능이 보다 우수하다.

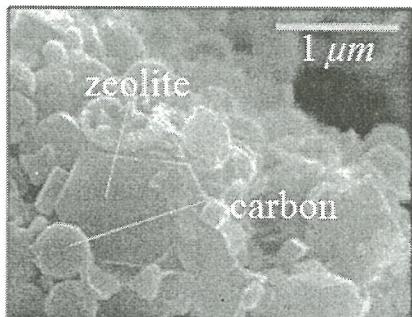


Fig. 2. Scanning electron microscopic image of the zeolite-carbon nanocomposite.

3. 결론

주형물질로 사용된 실리카를 별도의 후처리 공정을 거치지 않고, 모액을 이용하여 간단히 반응물을 첨가하여 실리카의 재결정 반응에 의해 매우 경제적으로 새로운 형태의 실리카-탄소 나노복합체를 제조하였다. 재결정에 의한 새로운 주형 합성법은 향후 방사성 폐기물 처리와 같은 산업적 응용분야에서 대량생산을 위한 지속가능한 환경친화형 공정개발에 큰 역할을 할 수 있을 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력기술개발사업과 방사선기술개발사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

- [1] Nature, Vol. 359, pp. 710, 1992.
- [2] J. Mater. Chem. Vol. 17, pp. 1758, 2007.
- [3] J. Am. Chem. Soc. Vol. 124, pp. 9382, 2002.
- [4] Microporous Mesoporous Mater. Vol. 80, pp. 195, 2005.
- [5] J. Am. Chem. Soc. Vol. 129, pp. 11022, 2007.
- [6] J. Am. Chem. Soc. Vol. 131, pp. 4220, 2009.
- [7] Appl. Catal. B:Environ. Vol. 88, pp. 368, 2009.