

방사성 세슘의 선택적 제거를 위한 기능성 실리카 나노입자 제조

양희만, 이근우, 서범경, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

hmyang@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설의 중대사고로 인하여 오염된 환경을 원래의 깨끗한 상태로 되돌리기 위해서는 안전하고 효과적이며, 신속하고 정확하게 오염을 제거할 수 있는 기술이 필요하다. 특히 엄청난 재앙을 불러온 체르노빌 원전 사고와 후쿠시마 원전 사고와 같은 원전 사고를 대비하기 위해서는 방사성 오염 물질로 오염된 지하수, 지표수, 공기, 토양 등에서 방사성 오염 물질을 제거 할 수 있는 흡착제 제조 기술의 확보가 매우 중요하다.

메조포러스 물질은 나노크기의 기공과 높은 비표면적을 지니고 있어 흡착제로서의 응용 가능성이 높아 환경 응용 분야에서 활발한 연구가 진행되고 있다. 본 연구에서는 메조포러스 물질을 이용하여 방사성 핵종의 흡착제로 응용하는 연구를 수행하였다. 이를 위해 나노미터 크기의 기공을 가지는 메조포러스 실리카 나노입자 (MCM-41)를 합성하고 post-grafting 법을 이용하여 표면을 아민기로 개질한 후, 방사성 세슘과 높은 결합력을 가진 불용성 페로시아나화물을 기공 표면에 접목시키기 위해 Cu 이온 및 ferrocyanide로 순차적으로 표면개질하여 기능성 메조포러스 나노입자를 합성하였다.

2. 본론

2.1 제조 방법

mesoporous silica 나노입자는 cetyl-trimethyl ammonium chloride (CTAB)를 template로 하여 Tetraethoxysilane(TEOS)를 전구체로 hydrolysis와 condensation 및 condensation을 통해 제조하였다. 먼저, 2 M의 NaOH solution 1.75 mL과 CTAB 0.5g을 과량의 물에 넣어준다. 반응기의 온도를 80°C로 올려준 후 TEOS를 천천히 첨가하여 2시간 동안 반응을 시켜준다. 반응이 끝난 후 물과 메탄올로 미반응물들을 제거 및 건조시킨다. 건조된 입자를 염산이 포함된 메탄올 용액에 첨가하여 24 시간동안 반응시켜 CTAB를 제거하여 mesoporous silica nanoparticles (MSN)을 얻는다.

1g의 MSN을 amino-ethyl-aminopropyl trimethoxysilane (EDA-silane)이 들어 있는 toluene 80 mL에 첨가하여 24 시간 동안 반응하여 EDA가 결합된 mesoporous silica 입자인 EDA-MSN을 얻는다. 그 후 적정량의 CuCl₂를 첨가하여 Cu가 결합된 Cu-EDA-MSN를 제조한다. 마지막으로 Na₄Fe(CN)₆가 녹아 있는 물에 첨가하여 ferrocyanide가 결합된 mesoporous silica nanoparticles (FC-Cu-EDA-MSN)를 얻는다.

제조된 FC-Cu-EDA-MSN은 Dynamic light Scattering (DLS), X-ray diffraction (XRD), Transmission Electron Microscope (TEM), Scanning Electron Microscope (SEM), BET, FT-IR, X-ray Photoelectron Spectrometry (XPS)를 이용하여 특성분석 하였으며 제조된 입자를 이용하여 세슘 흡착 능력을 확인하였다.

2.2 실험 결과 및 고찰

ethylenediamine (EDA)는 다양한 전이 금속과 킬레이트 결합 (chelate bond)을 이루는 물질로 잘 알려져 있다. 본 실험에서는 mesoporous silica 나노입자 기공 표면을 세슘(Cs)와 강한 흡착성이 있는 불용성 페로시아나화물로 표면 개질하기 위해 EDA-silane와 전이금속으로 Cu를 이용하였다.

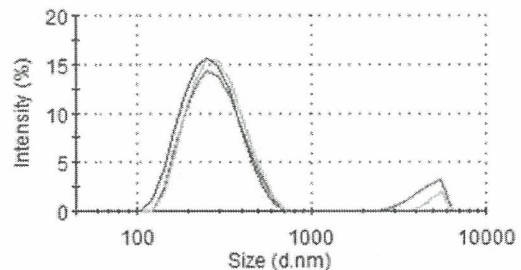


Fig. 1. 제조된 나노입자의 사이즈 (mesoporous silica nanoparticles(MNS, 파랑), Cu-EDA-MSN(빨강), Ferrocyanide-Cu-EDA-MSN(녹색)).

TEM, SEM, BET 등의 화학분석을 통해 제조된 FC-Cu-EDA-MSN의 특성을 하였다. 그림 1은 DLS

를 이용한 나노입자의 크기 보여주고 있다. MSN, Cu-EDA-MSN, FC-Cu-EDA-MNS의 평균 입자 사이즈가 각각 250 nm, 310 nm, 302 nm 이며, 이를 통해 입자 사이즈의 변화가 크지 않음을 확인하였다.

FT-IR, XPS 측정을 통해 제조된 mesoporous silica 나노입자의 표면개질 여부를 분석하였다. 그림 2에서 보는바와 같이 MSN의 경우, 1061 cm^{-1} 에서 피크는 Si-O-Si bond의 Si-O stretching vibration을 나타내며, EDA-MSN의 경우, 1600 cm^{-1} , 3400-3100 cm^{-1} 에서 NH와 NH₂ groups의 vibration 위치를 나타낸다. 또한, FC-Cu-EDA-MSN의 경우 2104 cm^{-1} 에서의 강한 흡수 피크를 통해 cyanide group (CN)이 성공적으로 잘 결합되어 있는 것을 확인 할 수 있다.

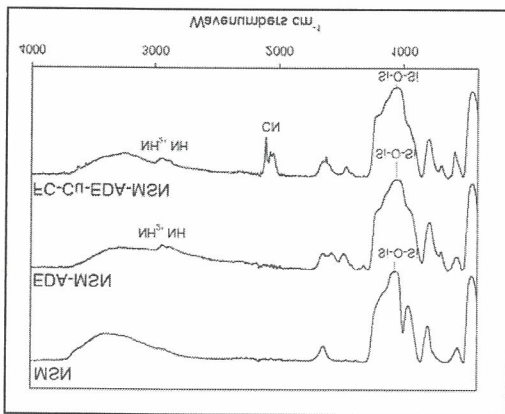


Fig. 2. mesoporous silica nanoparticles (MNS), EDA-MSN, Ferrocyanide-Cu-EDA-MSN 의 FT-IR spectra.

제조된 FC-Cu-EDA-MSN의 세습 흡착특성을 알아보기 위해 회분식 흡착실험을 수행하였다. 다양한 농도의 세습이 녹아 있는 수용액에 solution-to-solid ration를 200mL/g으로 입자와 함께 2시간 동안 교반하였다. 흡착 처리 후, 상등액 내의 세습의 농도를 AA로 분석하였다. 세습은 수분내로 나노입자 기공에 대부분 흡착되는 것을 확인하였으며, 수용액 내의 세습이 대부분 흡착되었다.

3. 결론

본 연구에서는 세습의 선택적 흡착과 높은 제거 효율을 위해 메조포러스 실리카 나노입자 기공 표면을 불용성 페로시아나화물로 표면개질하였으며 제조된 입자의 세습 흡착 거동을 살펴보았

다. 제조된 기능성 메조포러스 실리카 나노입자는 원자력 시설의 사고 시 발생하는 강, 하천 수영장 등의 세습 제거용 흡착제 그리고 원자력 시설에서 발생할 수 있는 방사성 오염물질의 제거를 위한 제염제로 활용 될 수 있다.

4. 감사의 글

This research was supported by the Korea Ministry of Education, Science, technology Grant funded by the South Korean government.

5. 참고문헌

- [1] Q. Cai et al., Chem. Mater. 13, 258-263 (2001).
- [2] S. Huh et al. Chem. Mater. 15, 4247-4256 (2003).
- [3] A. M. Klonkowski et al., Langmuir 1999, 15, 5814-5819 (1999).