

세슘 분리용 Prussian blue 나노복합체의 one-pot 합성 및 전기화학적 특성

조영진, 배상은, 박태홍*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*parktae@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력에너지는 에너지 생성과정에서 공기 중으로 이산화탄소를 방출하지 않는 유용한 그린에너지 중 하나이다. 그러나, 원자력발전으로 생성되는 방사성 원소의 누출 사고는 광범위하게 심각한 문제를 야기한다. 원전사고 관련 방사성 오염시료 및 고방사선 시설의 방사성 폐기물을 처분하기 위하여, 해당 방사성 원소에 대한 화학분석 수요가 급증하고 있는 실정이다. 그러므로, 신속하고, 정밀한 화학분석이 필요하고, 이를 위해 방사화학 분석의 효율성 증대가 요구되고 있다. 기존의 방사화학 분리용 소재들은 조건에 따라 복잡한 분리과정을 수행해야 되고, 이에 따른 과도한 방사성 폐기물들이 발생하는 등의 한계를 드러낸다. 따라서, 본 연구에서는 Prussian blue 유도체를 포함한 전도성 복합체를 합성하고, 세슘 (Cs) 등을 비롯한 방사성 원소의 흡착과 탈착을 위해 전기화학적 방법으로 접근하여, 더 효율적으로 화학분리 및 분석을 할 수 있는 복합소재를 개발하고자 한다.

2. 본론

2.1 Prussian blue 나노복합체 합성 및 전극제조

Prussian blue (PB) 나노복합체 합성: 40 mL의 graphene oxide (GO) 콜로이드 용액 (0.65 mg/mL)을 제조한다. 0.15 mmol의 $K_4Fe(CN)_6$ 와 0.2 mmol의 다양한 질산염금속 수화물 [$Fe(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$, $Co(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$, $Ni(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$, $Cu(NO_3)_2 \cdot 3H_2O$]을 각각 GO 콜로이드 용액에 첨가하고, 10분간 ultrasonication으로 분산 시킨다. 원심분리를 통해 PB-GO 나노복합체 입자를 반응용액에서 분리하고, 증류수로 여러번 헹군다. 40 °C에서 12시간동안 감압건조 시켜서, 최종적으로 PB-GO 나노복합체 (FePB-GO, CoPB-GO, NiPB-GO, CuPB-GO)를 각각 얻었다 (Fig. 1).

전극 제조: 3 mL의 GO, FePB-GO, CoPB-GO, NiPB-GO, CuPB-GO 용액 (0.5 mg/mL)을 각각 제조하였다. 그리고, GO (대조군) 와 PB-GO 나노복

합체 용액을 indium-doped tin oxide (ITO) 전극 표면위에 떨어뜨려 필름을 만든 후, GO와 PB-GO 나노복합체로 각각 코팅된 ITO 전극을 80°C에서 1 시간 동안 annealing 하였다.

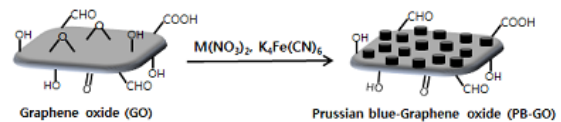


Fig. 1. Synthesis of Prussian blue-graphene oxide nanocomposite.

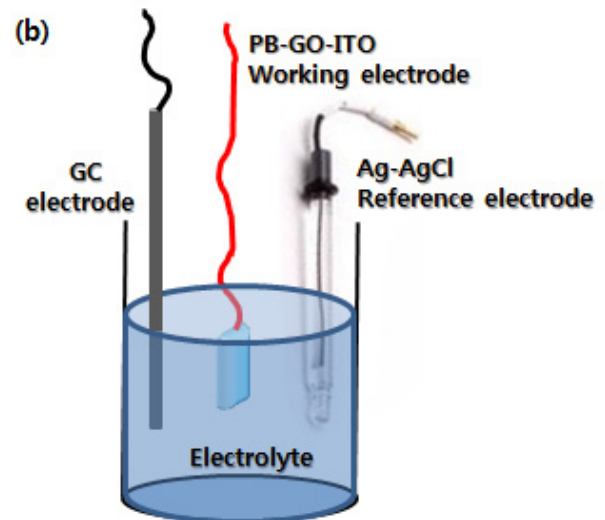
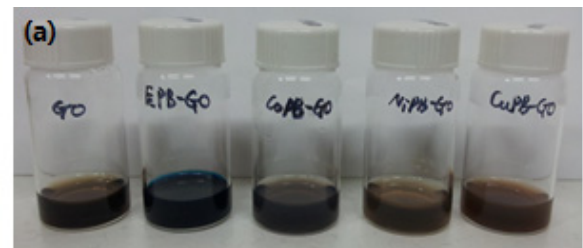


Fig. 2. (a) GO and PB-GO nanocomposite solutions for the coated ITO electrode (b) Schematic illustration for set up of electrode.

2.2 결과 및 고찰

전이금속과 헥사사이아노퍼레이트로 구성되어 있는 무기고분자인 PB는 전기화학적인 특성을 갖고

있기 때문에 전기화학센서 및 촉매를 비롯하여 다양한 분야에서 사용되고 있다 [1]. 또한, PB는 세습 흡착에 뛰어난 선택성을 갖고 있다 [2]. 이는 본 연구에서 목표로 하고 있는 세습의 흡착 및 탈착을 위한 전도성을 띤 분리소재로 이용할 수 있으리라 예상된다. 특히, 다공성을 갖고 있는 전극을 제조하면, 전기화학 기반의 분리용 소재로 그 활용 가치가 더 높아질 수 있다.

이에 본 연구에서는 다양한 전이금속과 GO를 활용하여 one-pot에서 PB-GO 나노복합체를 합성하였다 (Fig. 1). GO (대조군)와 전이금속을 포함한 PB-GO 나노복합체를 물에 재분산시켜 코팅용액을 제조하고 (Fig. 2a), ITO 표면에 떨어뜨려 코팅하여, GO 및 PB-GO 나노복합체로 유도된 ITO 전극을 만들었다. Fig. 2b는 전기화학적 특성을 알아보기 위하여, 본 연구에서 사용한 전극의 모식도를 보여준다. GC 전극, 기준전극으로 Ag/AgCl, PB-GO-ITO 작업전극, NaCl 전해액으로 구성하였다.

Fig. 3a는 PB 입자의 SEM 이미지이고, Fig 3b는 PB-GO 나노복합체의 이미지를 보여준다. 복합체 합성과정에서 PB입자가 GO에 잘 분산되어 PB-GO 나노복합체가 형성되었음을 보여준다. NiPB-GO의 전형적인 cyclic voltammogram (CV)은 Fig. 4에서 보여준다. 특히, 사이클 횟수에 따라 안정된 redox CV 패턴을 보여주었다. 이 결과는 PB가 합성되면서 GO에 안정적으로 잘 분산되어 결합되어 있음을 증명해준다. 따라서, PB-GO 나노복합체는 세습의 흡착 및 탈착을 전기화학적으로 효과적으로 제어 할 수 있을 것으로 예상된다.

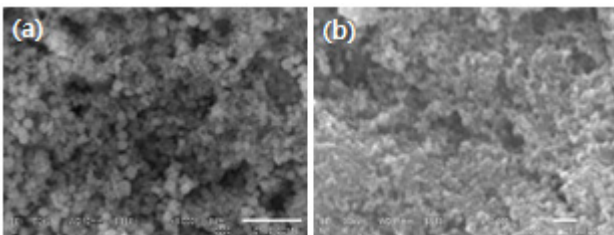


Fig. 3. SEM images of (a) Prussian blue, (b) Prussian blue-Graphene oxide nanocomposite.

3. 결론

다양한 PB-GO 나노복합체를 one-pot에서 합성하고, ITO 전극표면에 PB-GO 나노복합체 필름을 만들어, 전기화학적 특성을 평가하였다. 이를 기반으로 향후, 세습을 흡착 및 분리할 수 있는 특성을 전기화학적으로 평가 할 예정이다.

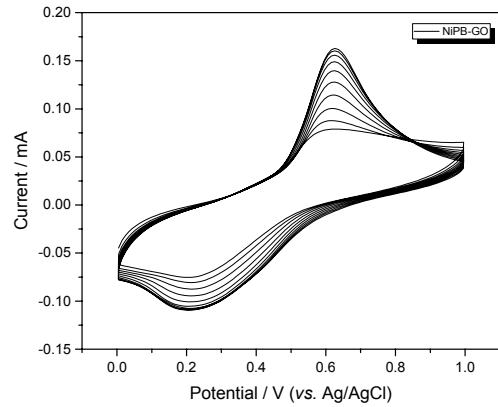


Fig. 4. Cyclic voltammograms of Prussian blue-Graphene oxide nanocomposite modified ITO electrodes.

4. 감사의 글

본 연구는 정부(미래창조과학부) 재원을 지원 받아 한국원자력연구원 창의연구사업의 일환으로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

- [1] N.R. de Tacconi and K. Rajeswar, "Metal hexacyanoferrates: electro-synthesis, in situ characterization, and applications", *Chem. Mater.*, 15, 3046-3062 (2003).
- [2] A.K. Vinpin, B. Hu and B. Fugetsu, "Prussian blue caged in alginate/calcium bead as adsorbents for removals of cesium ions from contaminated water ", *J. Hazard. Mater.*, 258, 93-101 (2013).