# 탄소나노튜브 정화 및 표면 개질을 위한 오존처리 반응시간 연구

**최세호***, 박태진, 백민훈
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*seho0405@kaeri.re.kr

## 1. 서론

최근 국내뿐 만 아니라 전 세계적으로 핵폐기물로 인한 환경적, 건강적인 문제들이 대두되고 있다. 이는 원자력에너지 생산의 시작과 그 산업의 발전이 진행되면서 그 문제 또한 증가 되고 있다. 방사성 핵종 중 하나인 요오드 또한 원자력 발전으로 인하여 생성되는 대표적인 물질 중 하나이다. 요오드는 대표적인 음이온성 방사성 핵종으로 흡착력이 매우 떨어지므로 그 이동성 또한 우수하다. 요오드는 음식과 식수 그리고 해수에 존재할 수 있어서 먹이사슬 관계에서 생물학적 과정에 의하여 농축이 되게 된다. 이러한 농축은 먹이사슬 과정을 통하여 어린아이부터 어른까지 갑상선 질환의 원인이 될 수 있다[1]. 이러한 요오드의 긴 반감기와 낮은 흡착력과 같은 화학적 특성, 그리고 물질의 위험성으로 볼 때 요오드 제거 기술 개발은 매우 중요하게 대두되고 있다.

이에 본 연구에서는 음이온성 방사성핵종의 제거 물질개발을 위한 과정으로 오존처리를 이용하여 탄소나노튜브 정화 및 표면개질을 하고자 한다[2]. 오존처리를 통하여 탄소나노튜브 표면에 알코올기, 카르복실기와 같은 기능기를 생성하는 것을 목적으로 한다. 이는 이후에 진행 될 음이온성 방사성 핵종과 탄소나노튜브와 중간매게체 물질과의 합성에도 효율을 높일 것이라 사료된다. 또한 오존처리를 통하여 탄소나노튜브의 손실을 최소화 하면서 정화하는 효과 또한 보일 것이라 사료된다.

## 2. 재료 및 실험방법

### 2.1 시료 준비

Multi-walled carbon nanotube (MWCNT, Aldrich)를 200 mg 씩 무게를 칭량하여 각각의 플라스크에 담는다. 해당 플라스크에 3차 증류수를 100 ml 담아서 시료/용액 비를 2.0 g/L를 만든다.

### 2.2 시료 오존처리

준비된 시료 플라스크를 각각 약 2분간 sonification을 실시한 이후 오존화 과정을 시작한다. 실험기기를 설치한 이후 오존발생기 (LAB-Ⅱ, 오존텍㈜)를 이용하여 오존을 주입한다. 주입은 후드 내부에서 사용을 하며 교반기도 함께 설치하여 500 rpm 교반을 시키면서 실험을 진행하였다. 오존발생기의 설정은 아래의 Table 1과 같이 설정하였다.

Table 1. Setting value of ozone generater

| | |
|---|---|
| 공급 gas | 외부 $O_2$gas |
| 오존발생압력 | 0.5 kg/cm$^2$ |
| mode | Low mode |
| SV | 70% |
| PV | 73W |
| 예상발생량 | 6.8 g/h |
| 예상 농도 | 92.1 g/m$^3$ |

오존 주입 시간을 10 분, 20 분, 30 분, 60 분으로 각각 오존발생량을 다르게 하여 실험을 진행하였다. 오존 주입을 마친 시료를 centrifuge를 이용하여 시료 세척 및 고체 시료 분리 작업을 실시하였다. Centrifuge를 마친 시료를 363K 상태의 오븐에서 밤새 건조 시켰다. 건조 된 시료의 무게를 칭량하여 오존처리 전 후 무게 비교를 하고 수득율을 계산하였다. 그리고 해당 시료의 오존 처리 이전, 이후를 X-ray diffraction (XRD) 데이터를 통하여 비교하여 산소의 탄소나노튜브 결합 여부를 판단한다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 오존 처리 결과

오븐에 건조시킨 시료의 무게를 칭량한 결과를 다음 Table 2에 나타내었다. 기존의 MWCNT에 비해 얻게 된 시료의 양이 적은 이유는 시료 세척과 상청액 분리 과정에서 고체 시료의 손실로 인한 점이라 사료된다. 질량의 변화에서 탄소나노튜브와 산소원자와의 결합을 확인하기 어렵다고 사료된다.

Table 2. weight measurement after ozonolysis

| | MWCNT (mg) | Solid after the experiment (mg) | Rate of yield (%) |
|---|---|---|---|
| MWCNT -10 | 200.14 | 175.49 | 87.68 |
| MWCNT -20 | 199.95 | 173.35 | 86.70 |
| MWCNT -30 | 199.20 | 186.41 | 93.58 |
| MWCNT -60 | 200.22 | 185.43 | 92.61 |

기존 탄소나노튜브의 경우 XRD peak 가 graphite와 유사하게 나온다. 그리고 산화 된, 즉, 산소가 결합된 탄소나노튜브의 경우 (002) peak가 2Θ = 12.4 로 peak의 이동을 보이게 된다[3,4]. 이번 실험을 통하여 얻은 MWCNT의 XRD데이터는 Fig. 1에 나타내었다. 오존처리 이전의 MWCNT, 10 분, 30 분 peak의 경우 (002) peak이 graphite와 유사하게 peak가 나타난다.

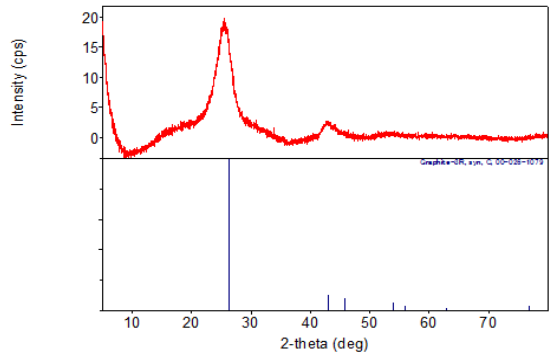


Fig. 1. XRD data of carbon nanotube before ozonolysis, comparing graphite-3R sym( C, 00-026-1079 ) peak.

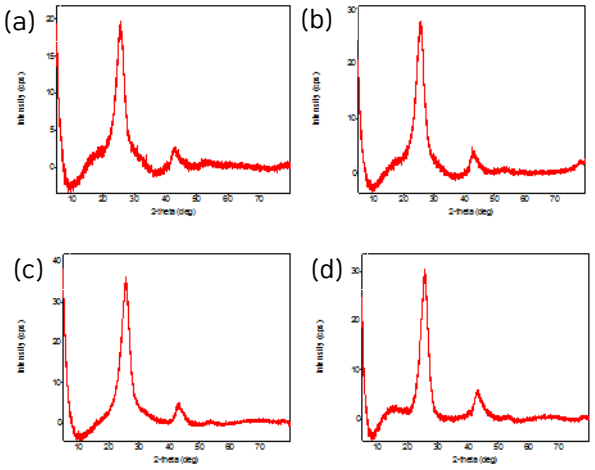


Fig. 2. XRD data of carbon nanotube ( a : before ozonolysis , b : 10min ozonolysis, c : 30min , d : 60min).

60 분 처리 한 MWCNT의 경우에는 2Θ = 12.4에 peak 나타나는 것이 보여진다. 이는 산화 된 MWCNT가 오존처리시간이 60 분 이후로 나타나기 시작한 것으로 사료된다. 오존처리 한 200 mg 전체를 XRD분석 한 것이 아닌 일부분을 하는 과정에서 10 분, 30 분의 결과로 보아 MWCNT 표면에 산소기가 결합율이 낮은 것으로 보이며 60 분부터 산소기 결합율이 높음이 나타남을 볼 수 있었다.

## 4. 결론

탄소나노튜브를 이용한 음이온성 방사성 핵종 제거 기술을 위한 과정이며, 탄소나노튜브의 흡착능을 음이온 방사성 핵종에 맞게 개질하기 위한 방법으로 오존처리기법을 사용하였다. 탄소나노튜브 표면개질이 음이온 흡착에 필요한 중간매개체와 탄소나노튜브의 결합에도 효과적임으로 사료된다. 본 연구의 오존처리 시 오존의 접촉시간이 탄소나노튜브의 표면개질에 영향이 있음을 알 수 있었다. 본 실험 데이터를 바탕으로 하여 오존발생기의 오존발생농도를 증가하며 오존접촉시간을 60 분 이상으로 다양한 장시간 데이터를 통하여 효과적인 표면개질 조건을 찾을 예정이다.

## 5. 참고문헌


[1] Roti, E; Uberto, E.D., “Iodine excess and hyperthyroidism.” Thyroid 11(5), 493-500 (2001).

[2] Oleg Byl; Jie Liu; John T. Yates, “Etching of carbon nanotubes by ozone- A surface area study”, Langmuir 21, 4200-4204 (2005).

[3] G. Ovejero; J. L. Sotelo; M. D. Romero; A. Rodriguez; M. A. Ocana; G. Rodriguez; J. Garcia, “Multiwalled carbon nanotubes for liquid-phase oxidation. Functionalization, Characterization, and Catalytic Activity”, Ind. Eng. Chem. Res 45, 2206-2212 (2006).

[4] Donghui Long; Wei Li; Wenming Qiao; Jin Miyawaki; Seong-Ho Yoon; Isao Mochida; Licheng Ling, “Partially unzipped carbon nanotubes as a superior catalyst support for PEM fuel cells”, Royal Society of Chemistry 47, 9429-9431 (2001).