

탄소나노튜브/ZIF-8 복합체의 합성 및 구조적 특성

윤하영, 심수정, 황윤솔, 홍지승, 윤상은, 전영상*

신한대학교 첨단소재공학과

Synthesis and Structural Characteristics of CNT/ZIF-8 Composites

Ha-Young Yoon, Su-Jeong Sim, Yoon-Sol Hwang, Ji-Seung Hong, Sang-Eun Yoon, Youngsang Chun*

*Dept. of Advanced Material Engineering Science, Shinhan University.

요약

금속-유기 골격체(Metal-Organic Frameworks, MOFs)는 높은 비표면적과 규칙적인 기공 구조를 갖는 다공성 소재로 다양한 분야에서 활용되고 있다. 그러나 낮은 전기전도성과 구조적 안정성의 한계는 실제 응용에 있어 보완이 필요한 요소이다. 본 연구에서는 전기전도성이 우수한 탄소나노튜브(Carbon Nanotubes, CNTs)와 ZIF-8을 복합화한 CNT/ZIF-8 복합체를 합성하고, CNT:MOF 질량비, 반응 시간 및 용매량 변화에 따른 구조적 특성을 분석하였다. 합성된 시료의 형태와 미세구조는 주사전자현미경(SEM)을 이용하여 관찰하였으며, 그 결과 일부 조건에서 다면체 형태의 ZIF-8 결정과 CNT가 함께 분포하는 복합 구조가 확인되었다. 특히 CNT:MOF 질량비 1:3, 반응 시간 3 h, 용매량 30 mL 조건에서 상대적으로 뚜렷한 구조가 관찰되었으며, 이는 CNT/ZIF-8 복합화를 이루기 위한 최적 조건의 탐색이 중요함을 시사한다.

1. 서론

금속-유기 골격체(MOFs)는 높은 비표면적과 규칙적인 기공 구조를 갖는 대표적인 다공성 소재로서 촉매, 가스 저장 및 흡착 분야 등에 활용되고 있다. 그 중 ZIF-8은 비교적 우수한 구조적 특성과 다공성 구조를 가지므로 다양한 응용 가능성을 갖는 소재로 알려져 있다[1]. 그러나 낮은 전기전도성과 구조적 안정성의 한계는 실제 기능성 소재로의 활용에 있어 보완이 필요한 요소이다. CNT는 우수한 전기전도성과 기계적 강도를 갖는 대표적인 탄소 나노소재로, ZIF-8과 복합화할 경우 복합체 내 전자 전달 경로 형성과 구조적 연결성 향상에 기여할 수 있을 것으로 기대된다[2]. 이에 본 연구에서는 CNT와 ZIF-8을 복합화한 CNT/ZIF-8 복합체를 합성하고, CNT:MOF 질량비, 반응 시간 및 용매량 변화에 따른 구조적 특성 변화를 평가하고자 하였다.

2. 실험 재료 및 방법

2.1 CNT/ZIF-8 복합체 합성

ZIF-8 전구체는 Zinc sulfate(Sigma Aldrich) 와 2-methylimidazole(Daejung Chemicals)을 이용하여 제조하였다. 증류수 20mL가 담긴 Falcon tube에 Zinc sulfate 와 2-methylimidazole을 투입한 후 digital shaker (SH1-0, Labtron)를 이용하여 반응을 진행하였다. 반응 시간 변수 조건은 1.5 h, 2 h 및 3 h으로 설정하였다. 이후 원심분리기(Beckman Coulter)를 이용하여 상등액을 제거한 뒤 증류수로 세척하였다. CNT/ZIF-8 복합체 합성을 위하여 준비된 ZIF-8이 포함된 튜브에 CNT 3 mg과 Hexane 1.5 mL를 첨가한 후 초음파 분산을 수행한 뒤, 다시 교반을 진행하였다. 이후 원심분리기를 이용하여 세척하였으며, 증류수를 이용하여

[Table 1] Parameters for determining the optimal synthesis ratio: CNT/MOF Mass Ratio, Time, and Solvent Volume.

Sample	CNT/MOF 질량비	시간	용매량
a	1:0.6	2h	30mL
b	1:3	1.5h	30mL
c	1:1.2	1.5h	20mL
d	1:3	3h	30mL

세척 과정을 반복하였다. CNT/ZIF-8 최적 합성비를 확인하기 위하여 Table 1과 같이 설정하였다.

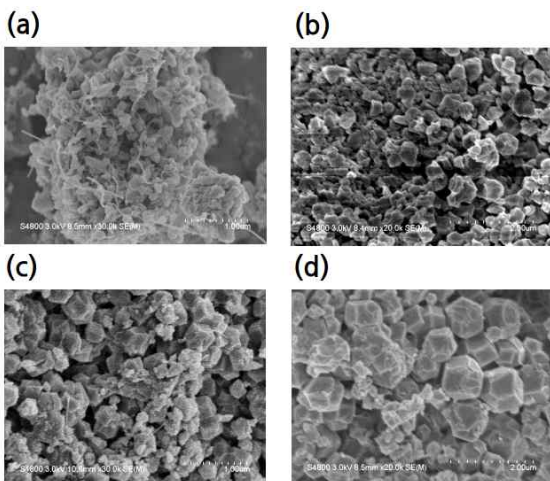
2.2 특성 분석

합성된 시료의 형태와 표면 미세구조는 주사전자현미경 (SEM, Quanta 250 FEG system)을 이용하여 분석하였으며, 합성된 시료의 화학적 결합 및 기능기 확인을 위해 적외선 분광법(FT-IR, HORIBA JOBIN YVON SAS)을 이용하여 분석하였다.

3.결과 및 토의

3.1 SEM 분석에 따른 구조적 특성

Fig 1.은 CNT/ZIF-8 합성된 SEM 결과이다. ZIF-8 시료에서는 다면체 형태의 결정 구조가 관찰되었다. Fig 1 (a)에서는 CNT가 흡착된 ZIF-8 결정 입자 간에 형성된 네트워크 형태의 구조가 확인되었으나, ZIF-8 고유의 다면체 결정 구조는 관찰되지 않았다. Fig 1(b)의 경우 ZIF-8 결정 입자는 형성되었으나 CNT의 흡착 양상은 확인되지 않았다. Fig 1(c)에서는 ZIF-8 다면체 결정 입자와 CNT가 흡착된 ZIF-8이 일부 확인되었음에도 불구하고, CNT의 흡착 형태가 명확하게 나타나지 않았다. 반면 Fig 1(d)에서는 다면체 형태의 ZIF-8 결정과 CNT가 공존하며 분포하는 복합 구조가 상대적으로 뚜렷하게 관찰되었다. 이러한 결과는 CNT의 함량 및 반응 조건이 복합체의 형태학적 구조 형성에 유의미한 영향을 미치는 주요 변수임을 시사한다.

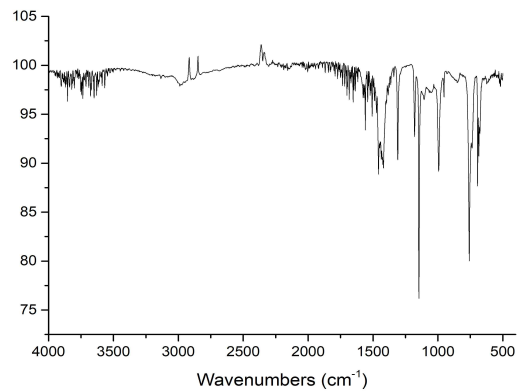


[Fig 1] SEM images of ZIF-8/CNTs: (a) 2h, 1:0.6 (CNT : MOF), 30mL, (b) 1.5h, 1:3 (CNT : MOF), 30mL, (c) 1.5h, 1:1.2 (CNT : MOF), 20mL, (d) 3h, 1:3 (CNT : MOF), 30mL

3.2 FT-IR 분석에 따른 화학적 특성

Fig 2.는 최적 조건인 3h, 1:3 (CNT ; MOF), 30mL로

합성된 CNT/ZIF-8의 FT-IR(A230862, SHIMADZU) 이미지이다. ZIF-8의 특성 피크가 뚜렷하게 관찰되었다. 1500-1350 cm^{-1} 영역에서 나타나는 강한 흡수 대역은 이미다졸 링(imidazole ring)의 신축 진동에 기인하며, 1146 cm^{-1} 부근의 피크는 C-N 결합의 신축 진동을 나타낸다. 또한 1000-600 cm^{-1} 영역에서 관찰되는 다양한 피크들은 이미다졸 굽힘 진동과 관련이 있으며, 특히 421 cm^{-1} 부근의 피크는 Zn-N 결합의 형성을 의미하여 ZIF-8 구조가 성공적으로 합성되었음을 확인 할 수 있습니다. CNT가 복합화된 시료의 경우, CNT 표면의 기능기나 탄소 골격에 의한 미세한 흡수 대역이 ZIF-8의 주요 피크와 중첩되어 나타난다. 2900 cm^{-1} 부근에서 관찰되는 작은 피크들은 유기 링커의 C-H 결합 혹은 CNT의 존재에 의한 것으로 판단된다.[3,4]



[Fig 2] FT-IR spectra of CNT/ZIF-8 composites

4.결론

본 연구에서는 CNT와 ZIF-8을 복합화한 CNT/ZIF-8 복합체를 합성하고, CNT:MOF 질량비, 반응 시간 및 용매량 변화에 따른 구조적 특성과 화학적 기능기를 SEM과 FT-IR을 통해 분석하였다. 일부 조건에서 다면체 형태의 ZIF-8 결정과 CNT가 함께 분포하는 복합 구조가 관찰되었으며, 특히 CNT:MOF 질량비 1:3, 반응 시간 3h, 용매량 30mL 조건에서 상대적으로 뚜렷한 구조가 나타났다. FT-IR 분석을 통해 ZIF-8 고유의 이미다졸 링 구조와 Zn-N 결합이 형성되었음을 확인하였으며, 이를 통해 CNT와 MOF가 화학적 특성을 유지하며 성공적으로 복합화되었음을 입증하였다. 이러한 결과는 CNT/ZIF-8 복합화가 네트워크 구조 형성에 영향을 미치며, 구조적 안정성 향상 가능성을 시사한다. 다만 기존 SEM, FT-IR로는 CNT/ZIF-8의 복합화를 정확하게 입증하기엔 어

려운 부분이 있는 것으로 확인되며, 전도성 및 구조적 안정성 향상에 대한 해석은 복합 구조 형성에 따른 가능성의 수준에서 이해하는 것이 타당하다. 향후 이러한 복합화 효과를 보다 명확히 규명하기 위해서는 추가적인 특성 분석이 필요하다.

참고문헌

- [1] Yusuf, V. F.; Malek, N. I.; Kailasa, S. K. Review on Metal-Organic Framework Classification, Synthetic Approaches, and Influencing Factors: Applications in Energy, Drug Delivery, and Wastewater Treatment. *ACS Omega* 2022, 7(49), 44507-44531
- [2] Lin, C.-Y.; Chang, J.-W.; Lin, M.-H.; Wu, K.-C.; Hong, S.-H.; Lin, J.-M.; Kung, C.-W.; Liu, C.-L. Carbon nanotube/two-dimensional metal-organic framework composites with enhanced thermoelectric performances for thermoelectric generators. *Chem. Eng. J.* 2025, 521, 166861.
- [3] Shao, P.; He, Z.; Hu, Y.; Shen, Y.; Zhang, S.; Yu, Y. Zeolitic Imidazolate Frameworks with Different Organic Ligands as Carriers for Carbonic Anhydrase Immobilization to Promote the Absorption of CO₂ into Tertiary Amine Solution. *Chemical Engineering Journal* 2022, 435, 134957
- [3] Bergaoui, M.; Khalfaoui, M.; Awadallah-F, A.; Al-Muhaseb, S. A Review of the Features and Applications of ZIF-8 and Its Derivatives for Separating CO₂ and Isomers of C₃- and C₄- Hydrocarbons. *J. Nat. Gas Sci. Eng.* 2021, 96, 104289
- [4] Daraee, M.; Saeedirad, R.; Ghasemy, E.; Rashidi, A. N-CNT/ZIF-8 Nano-Adsorbent for Adsorptive Desulfurization of the Liquid Streams: Experimental and. *J. Environ. Chem. Eng.* 2021, 9, 104806