

## 양전하가 부가된 수처리 필터의 입자제거특성에 관한 연구

정 성 학, 김 종 원, 김 상 희, 전 병 현, 이 승 갑, 이 재 근\*, 안 영 철\*\*†  
(재)부산테크노파크, \*(주)에코에너지기술연구소, \*\*부산대학교

### A Study on the Positively Charged Filter for Removing Fine Particles in Water

Sung-Hak Jung, Jong-Won Kim, Sang-Hee Kim, Byung-Heon Jeon,  
Seung-Gap Lee, Jae-Keun Lee\*, Young-Chull Ahn\*\*†

*Mechanical Material and Parts Center, Busan Techno-Park, Busan, 618-230, Korea*

*\*EcoEnergy Research Institute, Busan, 618-230, Korea*

*\*\*Department of Architectural Engineering, Pusan National University, Busan, 609-735, Korea*

*(Received October 31, 2011; revision received February 16, 2012)*

**ABSTRACT:** The purpose of the present work is to investigate the removal characteristics of positively charged filters for capturing negatively charged particles such as bacteria and virus in water. In order to reduce the pressure drop and increase the filtration efficiency, the filter media, modified by charge modifier having positive functional groups, is developed and evaluated. Improved liquid filters have been developed with the modified surface charge to capture and adsorb particles by electrokinetic interaction between the filter surface and particles contained in an aqueous liquid. The positively charged filter media is composed of glass fiber, cellulose and poly-ethylenimine resin for positively charging with the variation of volume ratio. The zeta potential value of the positively charged filter is +37.92 mV at the glass fiber and cellulose content ratio of 50 : 50 with resin content of 100%, while that of the PSL test particle is -23.5 mV at pH 7. The removal efficiency of the electro-positively charged filter is 98% for PSL particles of 0.11  $\mu\text{m}$ , while that of the negatively charged filter is 7%. The positively charged filter media showed the potential to be an effective method for removing fine particles from the contaminated water for liquid filtration.

**Key words:** Positively charged filter(양전하필터), Hydrosol(수중입자), Glass fiber(유리섬유), Zeta-potential(제타포텐셜)

### 1. 서 론

물속에 존재하는 오염물질은 대부분 음으로 대전되어 있으며, 천연유기물질(Natural Organic Matter;

NOM)을 비롯한 수많은 이온성 물질, 화학물질이 존재하며 상수처리 과정에서 제거되지 않고 새로운 오염물질을 발생시키는 원인물질로 작용한다. 특히 최근에는 염소소독으로 제거되지 않는 바이러스(Virus), 크립토스포리디움(Cryptosporidium), 자이알디아(Giardia) 등의 병원성 미생물이 지표수와 지하수에 존재하므로 냉동공조설비와 인체에 악영향을 미치고 있다.<sup>(1-6)</sup> 특히, 바이러스는 0.02~0.09  $\mu\text{m}$ 의

† Corresponding author

Tel.: +82-51-510-2492; fax: +82-51-514-2230

E-mail address: ycahn@pusan.ac.kr

크기로 일반 여과에 의해서 거의 처리되지 않으며, 내성이 강하여 수중에서 수개월 이상 안정적으로 살아있다. 수중 바이러스 및 오염물질을 제거하기 위해서 일본에서는 열연신법으로 표면을 불연성 폴리머로 친수성 코팅 처리한 친수성 필터를 제조하여 고도정수처리장에 사용하고 있다. 미국에서는 카본입자와 저밀도 폴리에틸렌 바인더를 대기온도에서 혼합하여 1~2분간 가압하여 다공성 필터를 제조하여 수중의 오염입자를 제거하고 있다.<sup>(7-10)</sup>

본 연구에서는 냉각탑과 열교환기의 파울링 방지 및 공조설비의 효율과 신뢰성향상을 위해 수중에서 존재하는 음으로 대전된 바이러스와 같은 미세오염입자를 제거하며 동시에 Cake 현상으로 인한 필터의 기공(Pore) 막힘 현상을 줄이기 위해 필터 표면에 양전하를 부가함으로써 수중 미세입자의 포집 및 제거 특성이 어떻게 변화하는지에 관한 연구를 실시하였다.

## 2. 실험장치 및 방법

### 2.1 양전하 부가 필터 제조장치

Fig. 1은 필터표면에 양전하가 부가된 필터를 제조하는 공정 개념도이다. 양전하가 부가된 필터를 제조하기 위해서 일반적으로 사용되는 습식제조방법을 통해 필터를 제조하였다. 필터의 원료로는 수중 분산에 용이한 유리섬유(직경 : 50~750 nm)와 셀룰로오스(직경 : 10~20  $\mu$ m)를 사용하였다. 양전하 부가 물질은 수중의 분산성이 우수한 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine)을 사용하였는데, 이는 두 개

Table 1 Conditions for manufacturing electro-positively charged filters

Test No.	Poly-ethylenimine (%)	Conditions
1	50	◦ Ratio of content · Glass fiber : 50% · Cellulose : 50% ◦ Agitation time : 6 h ◦ Roller pressure : 6 kgf/cm <sup>2</sup> ◦ Dry time : 20 min. ◦ Dry temperature : 130°C
2	70	
3	100	
4	200	

이상의 아민기를 가지는 지방성 폴리아민 계열의 경우 양전하를 띄게 하는 특징이 있기 때문이다.

Fig. 1에 제시된 장치는 재료를 교반하는 교반부, 교반된 재료 혼합물을 벨트에 일정하게 적층시키는 공급 호퍼, 및 필터의 성형성을 유지하기 위한 가압롤러로 구성되어 있다. 제작조건으로 교반속도는 섬유의 분산안정성을 고려하여 1,500 rpm으로 하였고, 수중분산성을 용이하도록 하기위해 교반탱크의 재질은 테플론으로 코팅하였다. 필터의 기공 및 강도 형성에 중요한 인자로는 수분제거를 위한 진공부가 있는데 진공도는 실험을 통한 경험값으로 가장 이상적인 66 kPa를 설정하였다. 필터의 성형성을 유지하기 위해 롤러의 가압력은 588 kPa(≒ 6 kgf/cm<sup>2</sup>)로 하였다.

Table 1은 양전하 부가 필터를 제조하기 위한 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine)의 구성비율을 나타낸 것으로, 필터 제조 시, 유리섬유와 셀룰로오스의 함량은 고정하였고, 양전하 부가물질인 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine)의 함량을 유리섬유 중량

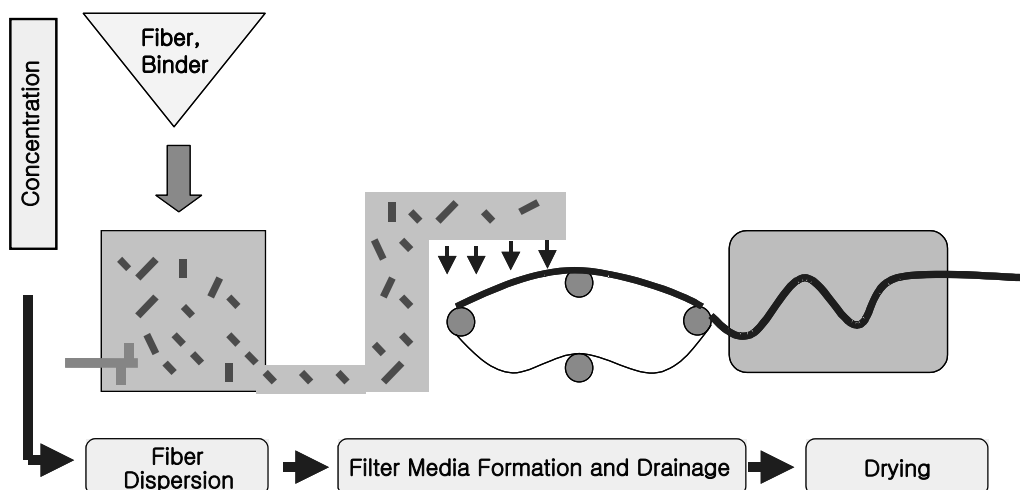


Fig. 1 Schematic diagram of producing the positively charged filter by wet processing.

비율에 따라 50%, 70%, 100%, 200%로 혼합하였다. Test 샘플 1의 경우, Glass Fiber와 Cellulose를 각각 50%씩의 비율로 만든 용액에 Glass Fiber의 50% 중량으로 양전하를 띄게 하는 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine)을 잘 혼합시켜 만들었다.

## 2.2 필터표면 양전하 분석장치

필터표면의 양전하량을 분석하기 위해 제타 포텐셜(Zeta Potential) 방법을 이용하였다. 제타 포텐셜은 콜로이드 용액 속에 일정 전장을 인가하여 그 전장 내를 영동하는 입자의 속도를 측정하여 계산되는 것이다. 제타 포텐셜이란 액체 속에 있는 물질이 가지는 표면전위를 말하는 것으로, 물질주위에 형성된 이온 확산층(Diffuse layer)의 시작점과 음 및 양이온의 수가 같게 되어 전기적으로 중화되는 점 사이의 전위차를 의미하는 것으로 전기적 이중층(Electrical double layer)이 입자의 크기에 비해 무시할 정도로 작을 때 제타포텐셜은 식(1)과 같이 표현된다.<sup>(6)</sup>

$$\zeta = \mu U_E / \epsilon_d \quad (1)$$

여기서,  $\zeta$ 는 콜로이드 입자의 제타포텐셜(mV)을 나타내며,  $\mu$ 는 용액의 점성으로서 일반적인 25 °C 물에 대하여  $8.95 \times 10^{-4} \text{ Nm}^{-2\text{s}}$ 의 값을 가진다. 또한  $U_E$ 는 전기력에 의한 콜로이드 입자의 전기적 유동 속도이며,  $\epsilon_d$ 는 용액의 유전율을 나타낸다. 측정방법으로는 광학현미경을 통해 입자를 직접 관측하는 현미경법과 레이저 도플러법을 채용한 전기영동 광산란 광도계로 측정하는 방법이 있다.

본 연구에서는 필터 표면의 제타포텐셜을 측정하기에 적합한 레이저 도플러법을 채용한 전기영동 광산란 광도계(오즈카전자, ELS 8000)를 사용하였다. 측정방법으로 필터 샘플을 석영 셀에 부착한 후 NaCl 수용액을 채운 다음 석영 셀 양단에 전기장을 형성하면 NaCl 수용액 속의 입자가 전기장에 의해 영동하게 된다. 전장에 따라 영동하고 있는 입자에 레이저광을 조사하면 입자의 산란광은 도플러 효과에 의해 주파수가 변환되며 이 변환량은 입자의 속도에 비례하므로 주파수 변환량을 측정함으로써 입자의 영동속도를 알 수 있다.

## 2.3 실험방법

Fig. 2는 필터의 미세입자제거효율 측정하기위해

사용된 시험장치의 개략도를 나타낸 것으로, Syringe Feeder로 시험입자를 공급하고 시험용 필터 전후의 입자농도, 탁도와 압력손실을 측정하는 시스템이다. 필터 하류에 남아있는 시험입자는 최종필터에 의해 제거되고, 초순수(Deionized Water) 탱크로 보내지며 전체 흐름은 펌프와 유량계에 의해 제어된다. 양전하가 부가된 필터의 미세입자 제거효율을 분석하기 위해 ASTM F 795<sup>(11)</sup> 규격에 따라 필터의 상부와 하부에서 물을 추출하여 ASTM D 6698<sup>(12)</sup>의 규격에 따라 탁도를 비교분석하였다.

## 3. 실험결과 및 고찰

### 3.1 필터제조 형상분석

Fig. 3은 필터의 섬유 표면에 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine)을 코팅처리 한 경우와 처리하지 않은 경우의 필터표면의 SEM 분석 결과이다. 그림에서 볼 수 있듯이, (a)의 양전하부가물질인 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine)이 코팅되지 않은 매끈한 유리섬유 표면과는 달리 (b)에서는 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine)이 섬유 표면에 균일하게 코팅되어 있음을 볼 수 있다.

Fig. 4는 습식제조방법을 통해 제조된 필터를 확대한 전자현미경 사진을 나타내며, 섬유 표면에 양전하 부가물질인 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine)

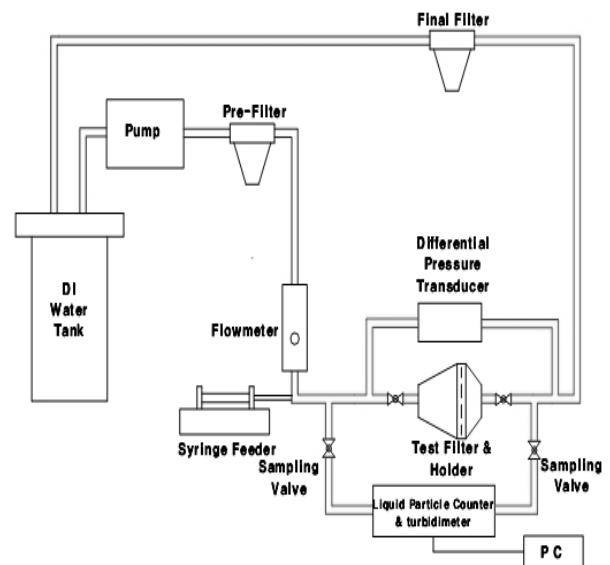
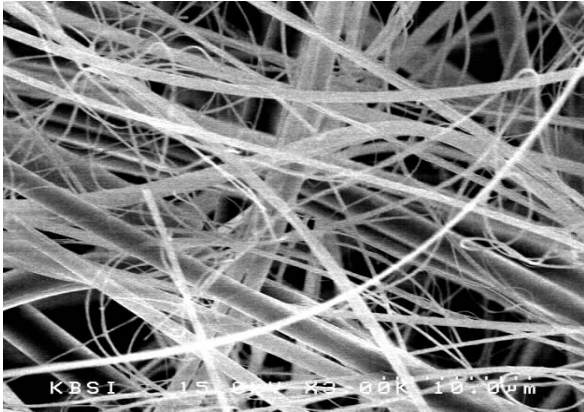
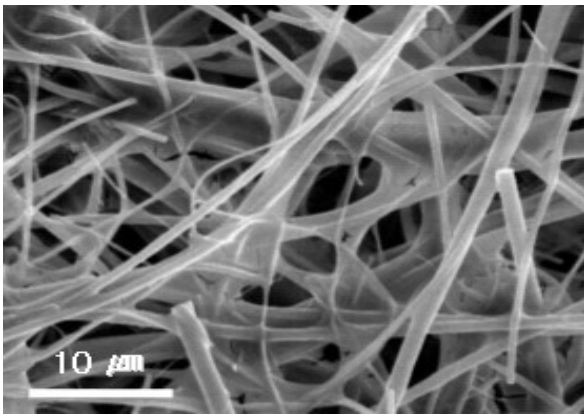


Fig. 2 Schematic diagram of measuring the filtration efficiency and pressure drop across the filter.



(a) Non-coated filter surface



(b) Poly-ethylenimine coated filter surface

Fig. 3. SEM analysis of filter media surface.

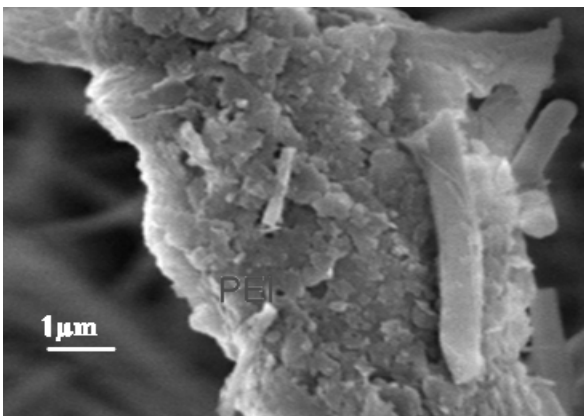


Fig. 4 Poly-ethylenimine coated filter fiber.

코팅된 것을 확인할 수 있다. 이러한 결과는 양전하 물질이 필터 표면에 고르게 코팅이 됨으로써 수중에서 우수한 양전하의 특성을 가진다는 것을 의미한다. 또한 필터의 기공은 필터의 압력손실 및 수명에 영향을 미치는 가장 큰 인자로서 필터기공분석은 필수적이다. 일반적으로 상용화된 기공에 의한

오염입자를 제어하는 막 여과 방식의 경우 기공의 크기가 0.1  $\mu\text{m}$ 로서 필터 기공 막힘 현상(Clogging)에 의해 압력손실이 증가하고 이로 인해 필터의 수명이 단축되는 단점을 가지지만, 본 실험을 위해 제조된 필터는 평균 0.5  $\mu\text{m}$  기공을 가지고 있어 수중 오염입자의 평균크기 보다 크므로 필터 기공 막힘 현상이 현저히 줄어들게 되어, 압력손실이 적고 이로 인해 필터 수명이 향상될 것으로 기대된다.

### 3.2 필터표면 전하 특성 분석

양전하 물질에 대한 필터표면의 전기적 특성을 분석하기 위해, 우선 양전하 물질인 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine)을 투입하지 않고 유리섬유와 셀룰로오스만으로 필터를 제작하였다. 유리섬유와 셀룰로오스의 혼합비율은 50 : 50으로 하였으며, 이때 측정 필터표면의 제타포텐셜 결과는 -50.42 mV로 측정되었다. 이는 유리섬유와 셀룰로오스는 그 자체로 수중에서 음전하의 특성을 가지고 있으므로 전기적 특성으로는 수중 입자의 포집에 불리한 특성이 있음을 알 수 있다.

Fig. 5는 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine) 혼합비율에 따른 필터표면의 양전하 특성을 나타내었다. 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine) 혼합비율이 100%일 경우 평균 +37.92 mV로 측정되었으며, 과도한 혼합 시 제타포텐셜 값이 줄어드는 것을 확인하였는데, 이러한 결과는 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine)의 수중분산성에 의한 것으로 분석된다. 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine)의 수중분산성이 안정화 되지 않으면 섬유 표면에 고른 코팅이 이

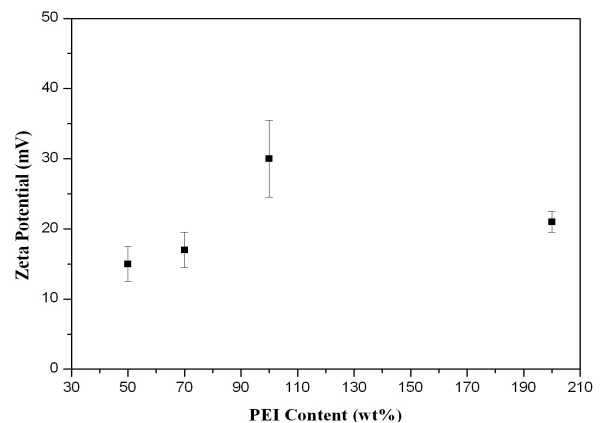


Fig. 5 Variation of positive zeta potential of modified filters at the Poly-ethylenimine ratio of mixing content.

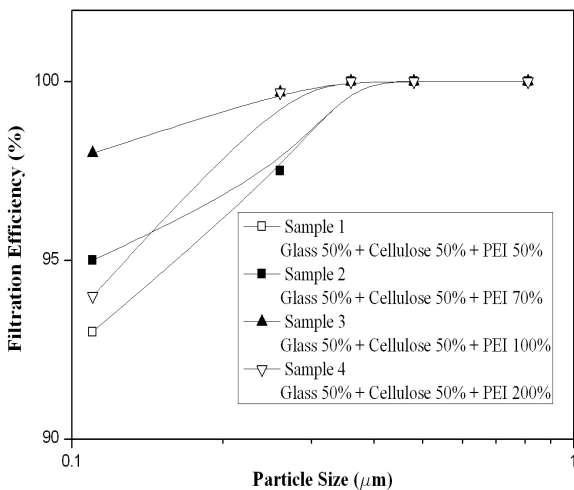
루어지지 않고 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine)가 국부적으로 응집되어 막을 형성하기 때문에 필터 표면의 양전하 값이 감소하게 된다.

### 3.3 입자제거 성능분석

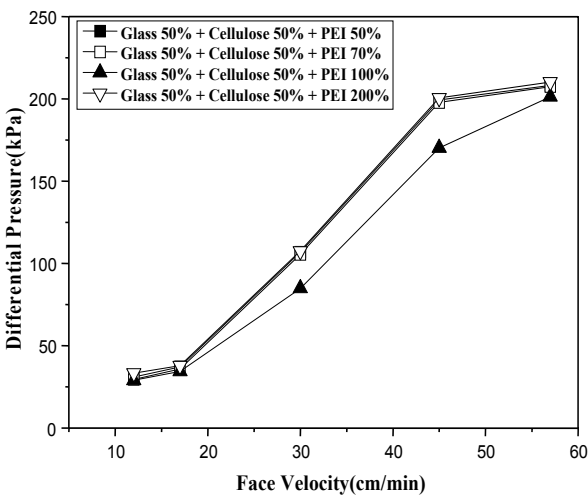
Fig. 6은 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine)의 투입 비율별 필터성능을 나타낸 것으로써 측정된 필터는 모두 우수한 입자 포집성능을 나타내는 것으로 나타내었다. 특히, 필터 표면의 제타포텐셜 값이 +37.92 mV로 가장 높게 나타나는 경우인 유리섬유, 셀룰로오스, 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine)의 혼합비율이 50 : 50 : 100으로 제조된 필터는 표준입

자 PSL(Polystyrene Latex) 0.11  $\mu\text{m}$ 에서 98%의 가장 높은 입자 제거 효율을 가졌으며, 압력손실도 낮은 결과를 도출하였다. 이러한 실험결과는 제조된 필터의 평균 기공이 0.45  $\mu\text{m}$ 이므로 필터의 기공에 의한 체가름 형태의 여과 메커니즘 보다는, 수중에 희석된 PSL 입자의 제타포텐셜 값이 -23.48 mV이므로 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine)에 의해 양전하가 부가된 필터와 PSL 입자간의 전기적인 인력으로 인해 높은 제거효율과 낮은 압력손실을 갖는 것으로 파악된다.

Fig. 7은 일반적으로 수중의 오염입자 제거에 널리 사용되는 막여과 방식의 필터인 멤브레인 필터

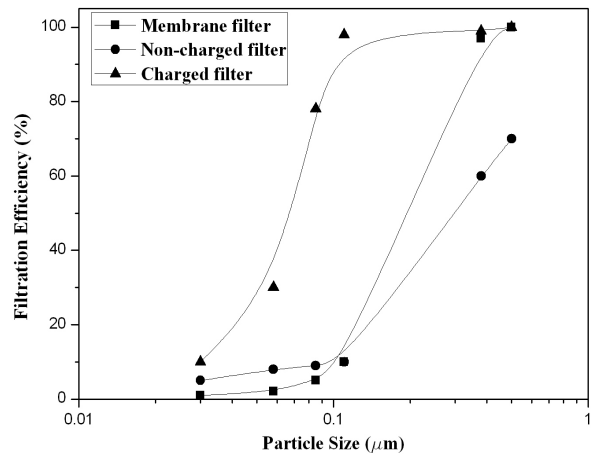


(a) Filtration efficiency

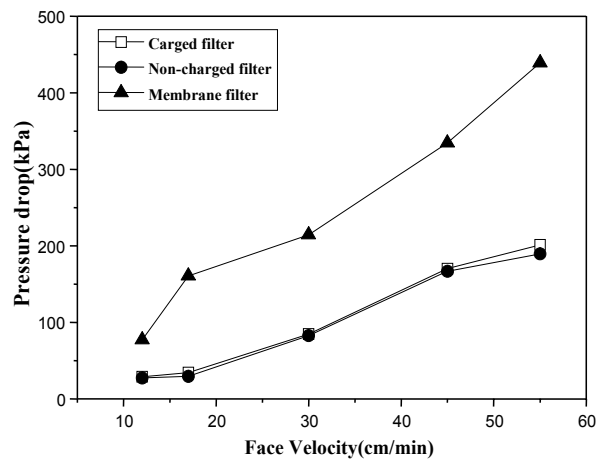


(b) Pressure drop

Fig. 6 Performances of the positively charged filters.



(a) Filtration efficiency



(b) Pressure drop

Fig. 7 Comparison of filter performance of the 0.45  $\mu\text{m}$  rated/negatively charged membrane filter, uncharged filters and positively charged filters used in this study.

(Millipore, PVDF)와 본 연구에서 제조된 양전하로 대전된 필터 및 대전되지 않은 필터의 3종류에 대한 입자제거 특성과 압력손실을 나타낸 것이다. 시험에 사용된 필터의 평균기공은  $0.45\ \mu\text{m}$ 로써 동일 조건을 주었으며, 필터표면의 제타포텐셜 값은 멤브레인 필터는  $-16.01\ \text{mV}$ , 양전하가 부가되지 않은 필터는  $-50.42\ \text{mV}$ , 양전하가 부가된 필터는  $+37.92\ \text{mV}$ 이다.

폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine)를 혼합하여 양전하로 대전된 필터에서는  $0.26\ \mu\text{m}$  PSL 입자에 대해 포집효율 100%를 얻을 수 있었다. 압력 손실의 경우 멤브레인 필터와 본 연구에서 제작된 필터를 비교할 때 멤브레인 필터의 압력손실이 훨씬 높은 것으로 확인되었다. 특히  $0.088\ \mu\text{m}$  크기 입자에 대해

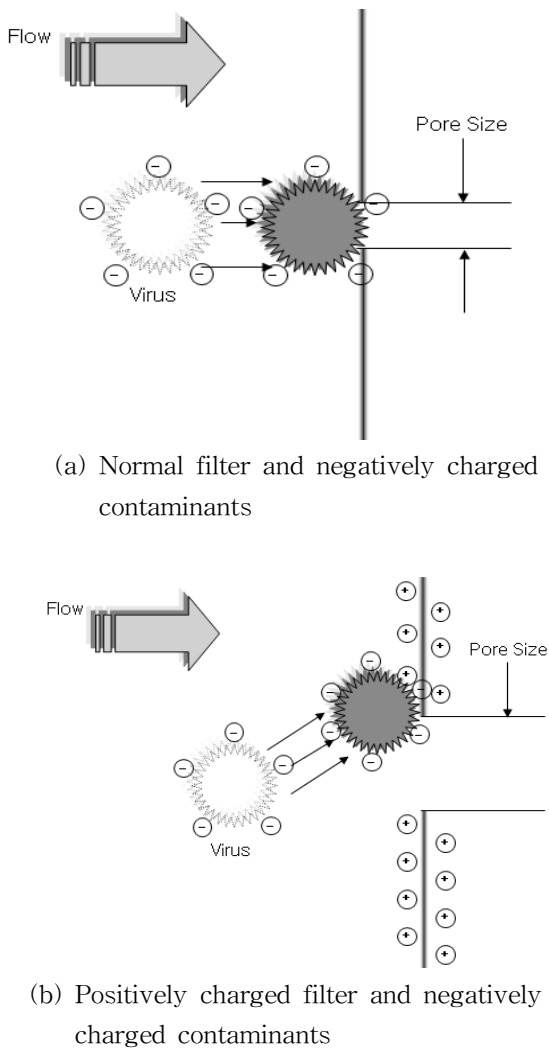


Fig. 8 Filtration mechanism of positively charged filters with negatively charged particles.

멤브레인 필터는 7% 정도의 포집효율을 나타내지만, 양으로 대전된 필터의 경우는 88% 정도로 매우 우수한 특성을 보이며, 압력손실 값도 낮아 필터의 수명이 증가할 것으로 예상된다.

Fig. 8은 물속에 존재하는 음으로 대전된 오염입자를 제거할 때 일반필터와 비교하여 양으로 대전된 필터의 우수성을 그림으로 표현한 것이다. 필터 종류에 따른 필터의 성능 값을 분석해보면 양전하가 부가된 필터가 미세한 입자를 제거하는데 우수한 성능을 보이는데, Fig. 8(a)처럼 필터 기공의 크기만을 이용하는 멤브레인 필터의 경우 오염 입자를 제거하는 과정에서 필터의 기공 보다 큰 오염입자는 쉽게 제거가 되지만, 작은 입자는 제거되지 않는 단점을 가지게 된다. 또한 멤브레인 필터의 경우 체가름 메커니즘에 의해 미세오염입자를 제거할 수는 있지만 압력손실의 급격한 증가로 인해 필터 수명이 단축되는 요인으로 작용한다. Fig. 8(b)처럼 양전하를 부가한 필터에서 필터 기공크기는 수중의 미세 오염 입자 보다 크지만, 음으로 대전된 미세 오염 입자를 전기적 흡인력으로 필터에 포집할 수 있으며, 또한 기존의 막여과 방식에서 발생하는 기공 막힘 현상이 양전하 필터에서는 천천히 나타나므로 대량의 정수처리 및 초순수 제조 공정으로도 사용이 가능할 것으로 기대된다.

#### 4. 결 론

본 연구는 기존의 막여과 방식의 단점을 보완하여, 수중에 존재하는 음으로 대전된 바이러스와 오염물을 효율적으로 제거하는 양전하 부가 필터의 제조 및 이에 대한 특성 연구를 수행하였으며 다음과 같은 결론을 도출하였다.

(1) 지방성 폴리아민 계열의 폴리에틸렌이민(Poly-ethylenimine)를 사용하여 섬유 표면에 양전하를 부가하여 필터를 제조하였으며, PEI 혼합비율 100%에서 제타포텐셜  $+37.92\ \text{mV}$ 로 최고값을 얻을 수 있었다.

(2) 양전하가 부가된 필터의 경우 PSL 입자크기  $0.11\ \mu\text{m}$ 에서 제거율 98%를 나타내었으며, 반면에 기존 필터나 멤브레인 필터의 입자제거효율은 7%로 나타났다.

(3) 멤브레인, 기존 필터 및 양전하가 부가된 필터를 비교한 결과 양으로 대전된 필터는 입자제거효과와 압력손실 측면에서 매우 우수한 성능을 보였으

며, 기존의 막여과 방식에서 발생하는 기막힘에 의한 급격한 압력손실 증가가 나타나지 않으므로 대량의 물을 정화하는 정수처리장에서의 사용이 가능할 것으로 예측되며, 아울러 초순수의 물을 정제하기 위한 시설에서 사용이 가능할 것으로 기대된다.

### 참고문헌

1. Michel, J. M., 1987, Filtration principle and practices, Marcel Decker. Inc.
2. Burt, H., Lewis, D. M., and Tapley, K. N., 1996, Resin coating for capillaries giving a net positive charge and great potential for customized modification of surface properties, Journal of chromatography, Vol. 739, pp. 367-371.
3. Chang, J. D., Chun, M. S., Chung, G. Y., and Kim, J. J., 2000, The influence of solution ionic strength on the permeate flux during dead-end membrane filtration of colloidal suspensions, Journal of the Korean Institute of Chemical Engineers, Vol. 38, pp. 485-490.
4. Destephen, J. A. and Choi, K. J., 1996, Modeling of filtration processes of fibrous nanofilter media, Separation Technology, pp. 55-67.
5. Geriba, C. P., Hou, K. C., Babineau, R. A., and Flore, J. V., 1980, Pyrogen control by depth filtration, Pharm. Tech, pp. 83-89.
6. Hazel, W., Anne, N., Asa, T., and Jarl, R., 2001, Aqueous amino silan modification of e-glass surface, Journal of Colloid and Interface Science, pp. 136-146.
7. Shin, J. H., Kim, G. T., Lee, J. S., Ahn, Z. S., Sung, C. M., Cha, S. R., Park, S. G., and Lee, J. K., 2004, Design and performance of electropositively charged filter for removing fine particles in liquid filtration, 9th World Filtration Congress, The American Filtration and Separation Society.
8. Kim, J. W., Ahn, Y. C., Yi, B. K., and Jeong, H. J., 2010, Development of nano ceramic filter for the removal of ultra fine particles, Journal of Air-Conditioning and Refrigeration Engineering, Vol. 22, No. 1, pp. 13-20.
9. Kim, G. T., Ahn, Y. C., and Lee, J. K., 2008, Characteristic analysis of electret filters made by electrospinning, Journal of Air-Conditioning and Refrigeration Engineering, Vol. 20, No. 12, pp. 820-824.
10. Lee, C. G., Joo, H. Y., Lee, J. K., Ahn, Y. C., and Park S. E., 2006, Development and performance evaluation of positively charged porous filter media for water purification system, Proceedings of SAREK Summer Conference, pp. 95-98.
11. ASTM F 795, 1988, Standard Practice for Determining the Performance of a Filter Medium Employing a Single-Pass, Constant-Rate, Liquid Test, American Society for Testing and Materials.
12. ASTM D 6698, 2000, Standard Test Method for Turbidity of Water, American Society for Testing and Materials.