

은나노를 부착한 활성탄 필터의 제균특성

허주영, 남상엽, 강정희*, 송지현*, 강병하***, 한성***
국민대학교 대학원, *세종대학교 토목환경 공학과, **국민대학교 기계·자동차공학부, ***(주)피엔아이

Antibacterial Characteristics of Silver Nano-Particles Attached to Activated Carbon Filter

Juyeong Heo, Sang Yeob Nam, Jeong hee Kang*, Ji Hyeon Song*, Byung Ha Kang**†, Sung Han***

Graduate School, Kookmin University, Seoul 136-702, Korea

**Department of Civil and Environmental Engineering, Sejong University, Seoul 143-747, Korea*

***School of Mechanical and Automotive Engineering, Kookmin University, Seoul 136-702, Korea*

****P&I, Ltd. Seoul 131-220, Korea*

(Received November 30, 2008; revision received September 23, 2009)

ABSTRACT: Activated carbon has long been used in purification processes for indoor air quality. However, the bioaerosol removal by activated carbon is not often sufficient to be used in an air control devise. In order to overcome these problems, silver nano-particles have been proposed as an antibacterial agent on the surface of activated carbon. Silver or silver ions have been known for antimicrobial activities. In this study, bioaerosol generated by using an Escherichia coli culture was introduced to a lab-scale column packed with activated carbon (AC) and silver nano-particles attached to activated carbon (Ag-AC). *E. coli* was almost completely removed in the Ag-AC column, whereas bioaerosol penetrated through the AC column. To determine the antibacterial effect of different filter materials in a full-scale air-handling system, another experiment was conducted using a wind tunnel equipped with a heat exchanger and three filter materials including commercial fabric, AC and Ag-AC. It was found that *E. coli* proliferated on the surface of the heat exchanger after 5 days, which dramatically increased bioaerosol counts in the effluent air stream. The fabric filter could not control the increased bioaerosol and most of the *E. coli* penetrated the filter. The bacterial removal efficiency was found to be approximately 45% in the AC filter, while the antibacterial efficiency increased to 70% using the Ag-AC filter. Consequently, the Ag-AC filter can be an effective method to control bioaerosol and improve indoor air quality.

Key words: Activated carbon(활성탄), Silver nano-particles(은나노), Antibacterial(제균), Bioaerosol (부유세균)

1. 서 론

† Corresponding author

Tel.: +82-2-910-4681; fax: +82-2-910-4839

E-mail address: bhkang@kookmin.ac.kr

최근 실내 공기질 문제에 대한 인식이 증대되어
각국의 공기질 관리 및 규제 정책이 심화되고 있

다. 특히 공조기의 필터와 열교환기 등의 습표면에서 발생하는 세균증식이 원인이 되어 실내로 각종 유해세균들이 유입되고, 이는 탄저병, 알레르기, 결핵 등 각종 질환의 원인이 된다.⁽¹⁾ 또한 악취를 발생시키는 등 청결한 환경을 위협하는 요소가 되기 때문에 항균 및 탈취를 위한 소재개발의 필요성이 제기되고 있다.

이를 위해 활성탄(activated carbon)을 이용한 공조필터가 사용되어 왔다. 활성탄은 각종 유기물이나 무기물로 이루어진 오염원 뿐만 아니라 세균 및 미생물로 오염된 기체나 액체 등이 활성탄소층을 통과할 때 오염물질들이 각 활성탄소의 표면에 흡착하게 되는데 이러한 흡착현상에 대한 흡착력의 세기는 활성탄소의 표면적, 입자크기 그리고 표면에너지 등에 의해서 결정된다고 보고되고 있다.^(2,3) 하지만 활성탄에 의해 일반세균의 살균(disinfection) 또는 불능화(inactivation) 효과를 얻기 어렵다. 또한 활성탄 표면에 세균이 부착하게 되면 활성탄에 흡착된 유기성 오염물질을 영양분으로 하여 세균 개체수가 기하급수적으로 재생되기 때문에 보다 효과적인 살균 능력을 필요로 한다.

최근 활성탄소에 흡착된 오염물질 중에서 여러 가지 세균 및 미생물들에 의해 활성탄의 2차 오염을 유발시키는 것과 관련하여 이에 대한 항균처리에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다. 특히 인간의 생활환경에서 자주 발생하는 곰팡이, 박테리아, 바이러스 등의 미생물 감염을 막기 위한 연구에 있어서 은(Ag) 또는 은이온(Ag⁺)의 강력한 항균특성은 오래전부터 알려져 있었다.⁽⁴⁻⁷⁾

은 또는 은이온의 항균 메커니즘에 대한 기존 연구에 의하면, 여러 가지 미생물 표면에 존재하는 티올기(thiol group), 아미노기(amino group), 그리고 카복실레이트기(carboxylate group) 등의 작용기는 은 또는 은이온과 잘 결합하게 된다. 이들 작용기에 은이나 은이온이 결합함으로써 박테리아나 미생물들의 호흡과정이나 전자전달과정을 방해하여 이러한 미생물들은 호흡기 및 대사 장애로 인하여 사멸되는 것으로 보고되고 있다.⁽⁸⁻¹⁰⁾

최근 은의 항균성을 활성탄과 결합하여 그 효과를 배가시키고자 활성탄의 표면에 은을 나노형태로 침착하여 오염된 물을 정화하는 제균실험이 수행되었으며, 활성탄의 제균성능보다 은이 침착된 은나노-활성탄 소재의 제균성능이 더욱 뛰어나다는 것을 밝혀낸 바 있다.⁽¹¹⁾ 하지만 실제 공조

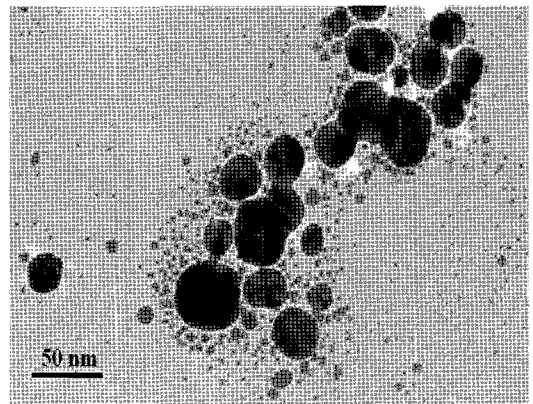


Fig. 1 TEM micrograph of Ag nano-particles.

기와 같은 공기를 정화하는 성능에 관한 연구는 수행되지 않았으며, 공조기의 필터에 적용하여 은나노의 첨가로 인한 제균성능의 향상에 대한 규명이 요구된다.

본 연구에서는 공기의 접촉 면적을 최대화 한 칼럼실험을 통해 활성탄과 은나노-활성탄의 제균성능을 확인하는 실험을 수행하였으며, 공조기의 열교환기 표면에서 증식되는 세균이 필터의 장착으로 인해 제거되는 제균성능 실험이 수행되었다. 본 연구에서 사용한 은나노 소재는 스퍼터링 진공 증착 공법을 통해 활성탄에 침착시켰으며,⁽¹²⁾ Fig. 1에 나타낸 TEM 이미지와 같이 그 크기는 50 nm를 넘지 않는다.

2. 실험 장치 및 방법

2.1 부유세균

본 연구에서 부유세균으로 사용한 미생물은 대장균(*Escherichia coli*)이었으며, 생물자원센터(BRC)에서 분양받아 영양배지(nutrient broth)에서 계대배양하였다. 부유세균 실험에 사용하기 직전에 배양한 대장균 용액을 phosphate buffer saline (PBS, 3.5 g KH₂PO₄, 4.3 g K₂HPO₄, 8.5 g NaCl per liter) 용액으로 희석하여 10⁴/mL가 되도록 하였다. 대장균 개수는 한천배지(nutrient agar plate)에서 성장하는 집락(colony forming unit, CFU)을 세어 제시하였다.

공기 중의 부유세균 측정에는 멤브레인 필터법을 사용하였으며, 미량 기체 펌프(MP-Σ500, SIBATA)를 이용하여 5 lpm의 공기를 멸균된 멤브레인(ste-

rilized membrane)에 통과시킨 후, 한천배지에서 올리고 30 ℃로 유지되는 항온챔버에서 24시간 배양하여 CFU를 측정하였다.

2.2 칼럼 실험 장치

칼럼 내로의 부유세균 유입과 취득 장치에 대한 개략도를 Fig. 2에 나타내었다. 칼럼의 지름은 3 cm, 길이는 10 cm이며, 칼럼 내부는 활성탄(AC) 및 은나노-활성탄(Ag-AC)으로 채웠다. 미래 배양해 놓은 대장균을 PBS 용액으로 희석하였으며, 분광광학계를 이용하여 광학밀도(optical density, OD)가 1.0으로 일정하게 조절하였다. 이를 초음파 진동을 이용하여 입자를 분산시키는 방식으로 PBS 용액과 대장균이 혼합되어 있는 부유세균(bioaerosol) 형태를 만들었으며, 이 방식은 대장균의 생존에 영향을 미치지 않는다. 이렇게 생성된 바이오에어로졸을 해파필터로 여과시킨 깨끗한 공기를 공기 주입기(LP-80A, best tech)를 이용하여 통과시켜 공기와 함께 칼럼내로 유입되게 하였다. 필터의 성능을 가시적으로 빠르게 확인하기 위하여, 유입되는 부유 세균의 농도는 실제 공조환경에 포함된 대장균의 수보다 극단적으로 많은 수의 대장균을 포함한 농도인 10⁴ CFU/m³이었다.

2.3 풍동실험

실제 열교환기에서 증식되는 세균과 이를 제거하는 필터의 제균성능 실험을 수행하기 위하여 풍동실험장치를 제작하였다. 풍동실험 장치는 Fig. 3의 개략도와 같이 송풍장치, 덕트, 시험부, 냉수 공급 장치와 자료획득 장치로 구성된다. 풍동장치의 길이는 2m, 폭 0.4m, 높이 0.3m이며, 각종 세균이

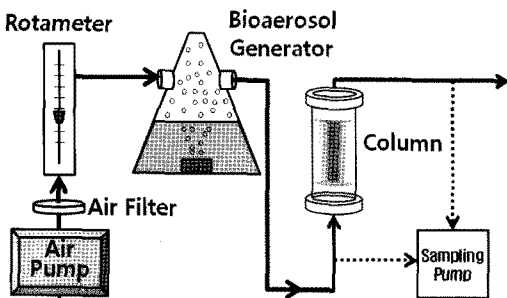


Fig. 2 Schematic of the column test.

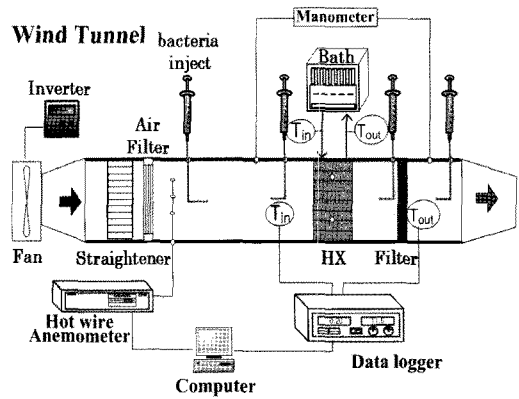


Fig. 3 Schematic of the wind tunnel experimental setup.

블지 않는 스테인리스 스틸 재질로 제작되었다. 풍동장치 내부에 들어가는 열교환기는 핀-튜브타입이며, 사용된 필터의 종류로는 부직포로 제작된 일반필터, 활성탄을 채운 활성탄(AC)필터 그리고 활성탄에 은나노를 첨착시킨 은나노-활성탄(Ag-AC) 필터 세 가지이다. 각 필터의 두께는 1cm이다.

풍동 내의 공기 속도는 1m/s로 열선 풍속계를 사용하여 조절하였으며, 시험부에서의 난류 강도를 감소시키고 유동 단면에서 균일한 속도 분포를 얻기 위하여 시험부의 상류 지점에 정류장치(straightener)를 설치하였다. 열교환기를 공조기와 동일한 조건으로 맞추기 위해 일정 온도의 공급수로 운전하였으며, 유량은 인버터를 이용하여 펌프의 회전수를 제어하여 조절하였으며, 로타메타(Blue White Co., F-50376LN)를 사용하여 유량을 측정하였고, 정확한 유량의 측정을 위해 초시계와 비커, 저울, 메스실린더를 이용하여 60초 간 측정된 유량의 평균값을 이용하여 유량계를 보정하였다. 이에 따른 유량계의 측정 오차는 ±3% 이내로 나타났다. 또한 공급수의 온도는 항온조를 이용하여 10 ℃로 일정하게 유지하며, 1.5 lpm으로 공급하였다. 열교환기 입구 부분에 T형 열전대(Omega Co.)를 부착하여 공급수의 온도를 측정하였다.

대장균의 유입 및 취득 장치는 칼럼실험과 동일하게 제작 사용하였으며, 세균을 공급하기 위한 유입관과 이를 다시 포집하기 위한 취득관을 열교환기 전단에, 열교환기와 필터의 중간지점에, 필터의 후단에 설치하여 총 3지점에서 공기질을 평가하였다.

3. 실험 결과 및 고찰

3.1 칼럼실험

활성탄과 은나노-활성탄의 제균성능의 차이를 확인하기 위한 실험으로 칼럼실험을 수행하였다. 칼럼에 활성탄만을 채우고 대장균을 포함한 바이오 에어로졸을 통과시키며 살균성능을 확인하고, 활성탄 입자에 1000 ppm의 농도로 은나노가 첨착된 은나노-활성탄 소재를 칼럼에 채우고 다시 실험을 수행하여 그 결과를 비교하였다.

활성탄만으로 채워진 칼럼을 사용하였을 때 시간에 따른 대장균수의 변화를 Fig. 4에 나타내었

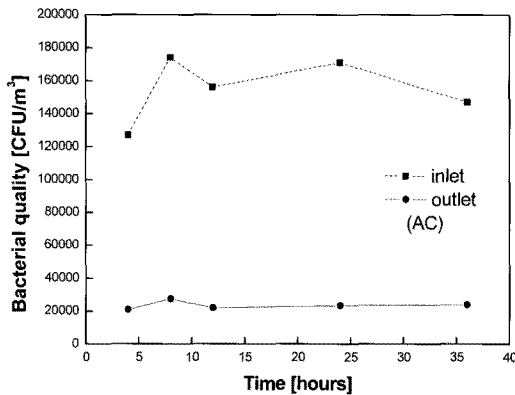


Fig. 4 Changes of *E. coli* numbers in the inlet and outlet of the activated carbon(AC) column.

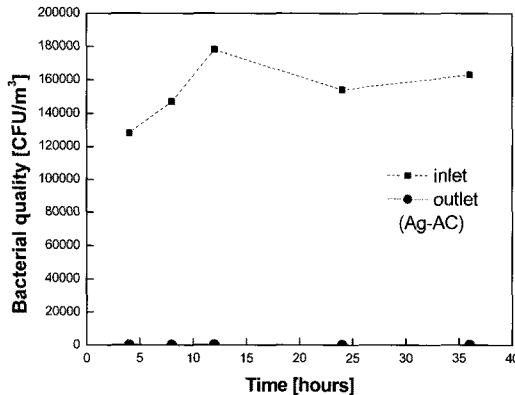


Fig. 5 Changes of *E. coli* numbers in the inlet and outlet of the silver nano-particle activated carbon(Ag-AC) column.

다. 칼럼의 입구에 대장균 주입수가 증가함에 따라 칼럼의 출구에서도 제거되는 대장균의 수가 증가되었으며, 평균 약 85%의 대장균이 활성탄 칼럼에 의해 제거된다는 것을 알 수 있다. Fig. 5는 은나노-활성탄 칼럼을 사용하였을 때 시간에 따른 대장균의 수를 보여주고 있다. 활성탄만 있을 때 보다 은나노-활성탄이 대장균을 100% 제거하는 월등히 우수한 제균성능을 보였다. 이 결과는 은나노 입자의 제균성능을 입증하고 있다.

3.2 풍동실험

풍동실험장치 내에서의 대장균 발생 유무를 확인하기 위해 열교환기와 필터가 장착되지 않은 상태에서 실험을 수행하였다. 대장균을 계속 주입하며 24시간 간격으로 취득하여 일정한 개체수가 공급되며, 풍동장치 내부에서 세균이 증식되지 않는지, 주입량이 그대로 취득이 되는지 확인한 결과를 Fig. 6에 나타내었다. 열교환기 및 필터를 장착하지 않은 상태에서 주입하고, 주입부와 풍동의 후단에서 각각 세 번씩 취득을 한 후 평균값을 확인한 결과, 주입한 만큼의 대장균 수가 풍동의 후단에서 취득되었다. 9일 간의 실험을 수행한 결과 풍동의 후단에서 일정한 양이 취득 되었기에 본 연구에 사용한 풍동장치에서는 대장균의 증식이 일어나지 않음을 알 수 있다.

풍동실험 장치에 열교환기를 장착하고 대장균을 부유세균 형태로 연속 공급하면서 열교환기에 부착 성장하는 미생물 변화를 측정하였다. 대장균

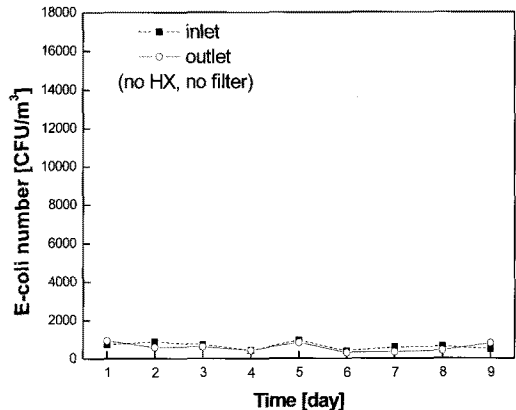


Fig. 6 The number of *E. coli* through the wind tunnel without heat exchanger.

을 공급하고 약 4일 후부터 열교환기를 통과한 공기의 대장균수가 급증하는 것을 확인할 수 있었다. 이는 열교환기를 통과하는 물의 입구온도를 10 ℃로 유지하여 열교환기 표면이 공기의 이슬점보다 낮게 함으로써 열교환기의 표면이 습하게 되어 유입 대장균이 열교환기 표면에서 증식하였기 때문이다. 이는 실내공기 관리를 위한 일반 열교환기가 부유세균의 서식 공급처 역할을 하고 있음을 확인해준다.

풍동실험 장치에 열교환기와 부직포로 된 일반 필터를 장착하고 대장균을 계속 주입하며 24시간 간격으로 공기를 취득하여 대장균 개체수를 확인하였다. 열교환기 전단에서 취득한 값을 유입량으로 정하고, 열교환기의 후단에서 취득하여 열교환기의 표면에 얼마나 많은 대장균이 증식했는지를 측정한다. 또한 열교환기 후단에 설치된 필터를 지나온 공기를 취득하여 필터가 얼마나 많은 대장균을 걸러내는지 측정하였다. 각각의 위치에서 세 번씩 취득을 한 후 평균값을 사용하였으며, 이를 단위부피당 개체수로 환산한 결과를 Fig. 7에 나타내었다. 평균 주입 대장균 개체 수는 333 CFU/m³이었으며, 열교환기를 지나는 공기는 4일째까지 비슷한 수치의 대장균수가 검출되다가 5일째 증가하기 시작하였으며, 6일을 거쳐 7일째에는 급격하게 개체수가 증가하여 16,361 CFU/m³의 수치를 나타내었다. 대장균의 증식 방식이 세포 분열이며, 분열을 준비하는 단계인 유도기를 지나 약 4일 이후부터 세균수가 기하급수적으로 늘어나는 대수기를 지나는 양상을 보인다. 일반필터의 포집성능은 대장균수가 적었던 초반에는 높다가,

개체수가 급증한 후반부로 갈수록 점점 감소하여 7일째에는 3%의 제균효과를 보였다. 이 결과로 미루어 보아 개체수가 급증 했을 때의 일반 부직포필터의 제균성능은 거의 없으며, 단지 여과에만 그친다는 결론을 얻을 수 있다.

은나노의 첨가로 인한 제균능력 향상의 효과를 규명하기위해 먼저 활성탄으로만 이루어진 필터로 실험을 수행하였다. 부직포 실험과 동일한 방식으로 실험을 수행하였으며, 그 결과를 Fig. 8에 나타내었다. 평균 주입 *E. coli* 개체 수는 일반필터 실험과 비슷한 수치인 324 CFU/m³이었으며, 열교환기를 지난 공기에서의 대장균의 개체 수는 5일째 까지 완만하게 늘어나다가 6일째에 급작스럽게 증가하여 16,889 CFU/m³의 수치를 나타내었다. 활성탄 필터를 장착했을 경우 개체수가 적었던 5일째 까지는 활성탄 필터의 평균 제균효과가 약 49% 가량이었으며, 이는 일반필터보다 약 10% 정도 향상된 결과이다. 개체수가 급증한 6일째에서의 활성탄 필터는 34.2% 정도의 포집 효과를 보였으며, 이는 후반 급작스럽게 많아진 대장균수가 검출되었을 때 제균성능을 갖지 않던 일반필터에 비해 우수한 효과이다. 이 결과는 활성탄이 대장균을 약 30% 이상 제거하는 제균성능을 가지고 있다는 것을 보여준다.

활성탄에 은나노를 첨착시켜 제작한 필터를 장착한 후 제균 능력 향상의 효과를 보기위한 실험의 결과를 Fig. 9에 나타내었다. 평균 주입 대장균 개체 수는 이 전 실험과 비슷한 수치인 548 CFU/m³이었다. 열교환기를 지난 공기를 취득하여 대장균수를 세어본 결과 4일째부터 대장균수가 점차적

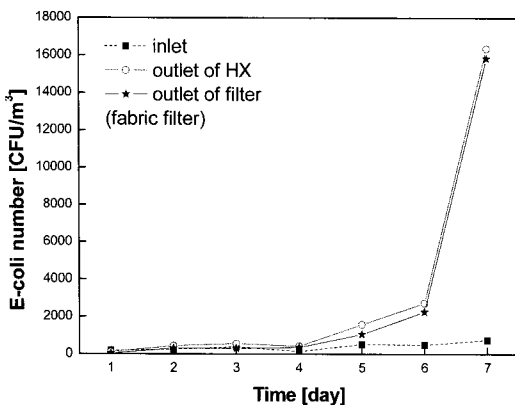


Fig. 7 Daily variation in the number of *E. coli* for the fabric filter in the wind tunnel.

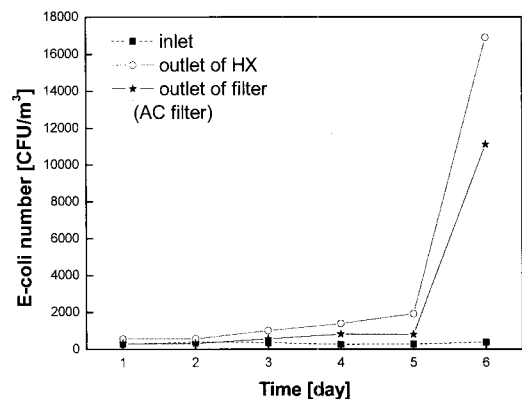


Fig. 8 Daily variation in the number of *E. coli* for the AC filter in wind tunnel.

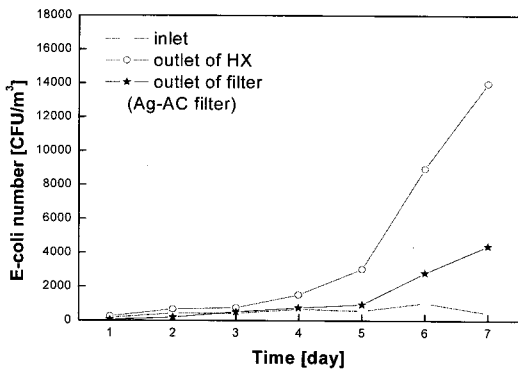


Fig. 9 Daily variation in the number of *E. coli* for the Ag-AC filter in wind tunnel.

으로 증가하기 시작하여 6일째에는 8,944 CFU/m³, 7일째에는 13,972 CFU/m³의 수치를 나타내었다. 여기서 주목할 점은 일반필터와 활성탄 필터의 경우와 비교하여 제균성능이 전체적으로 고르게 나타난다는 것과, 그 성능이 약 70% 정도로, 제균성능이 아주 미미했던 일반필터와 30%를 약간 웃돌던 활성탄 필터에 대비하여 두 배 이상의 제균성능을 가지는 것을 확인할 수 있었다.

따라서 열교환기 후단의 대장균수가 2,000 CFU/m³을 넘어가는 시점 이후의 유효한 제균성능을 비교한 결과를 Fig 10에 나타내었다. 일반필터는 10%의 제균성능을 보이며, 활성탄 필터는 약 45%의 제균성능을 가진다. 일반필터에 대비하여 활성탄의 제균성능이 35%가량 향상되는 결과이다. 활성탄에 은나노를 첨착시킨 은나노-활성탄 필터의 제균성능은 약 70%로서 활성탄만 있을 때의 성능에 대비해 약 25%가량 향상된 결과를 보인다.

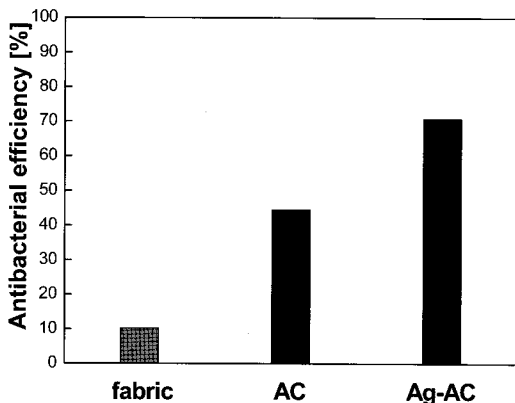


Fig. 10 The antibacterial efficiency.

4. 결 론

공조기의 열교환기 상에 증식하는 대장균의 효과적인 제거를 위해 일반필터, 활성탄 필터, 활성탄에 은나노가 첨착된 은나노-활성탄 필터의 제균성능을 비교하였다. 주입되는 대장균의 수는 일정수준으로 유지하였으나 모든 실험에서 약 4~5일이 지나면 열교환기 후단에서 대장균수가 급증하는 것을 볼 수 있었다.

일반필터는 대장균수가 적었던 초반에는 약 30% 가량의 제균효과를 보였으나 대장균수가 급증한 후반에는 제균성능이 급격히 감소하였다. 이에 반해 활성탄 필터는 실험이 수행된 기간 동안 전체적으로 약 45% 가량의 제균성능을 고르게 나타냈다. 이 결과는 활성탄이 대장균을 포집하는 제균성능을 가지고 있다는 것을 보여준다. 마지막으로 활성탄에 은나노 입자를 첨착시킨 은나노-활성탄 필터로 제균성능을 알아본 결과 전체적으로 약 70% 가량의 제균성능을 고르게 나타내는 결과를 얻었다. 같은 양의 활성탄을 사용했고, 단지 은나노를 첨착시킴으로써 45%의 제균성능이 70%로 향상되는 것을 확인할 수 있었다. 이 결과는 은나노가 뛰어난 제균성능을 가지고 있음을 보여주는 결과이며, 활성탄에 은나노를 첨가함으로써 약 30% 가량의 제균성능이 향상됨을 보여준다.

은나노 입자의 첨가로 제균성능이 향상되었으며, 은나노 입자의 제균 및 탈취 성능을 일반 공조기에 적용하여 공기 질을 향상 시키는 것에 큰 역할을 할 것이라고 판단된다. 그러나 은나노의 함유 정도에 따라 그 입자가 떨어져 나오는 등 인체 유해 영역에 대한 연구는 필요할 것이다.

후 기

본 연구는 환경부의 “차세대 핵심 환경기술 개발사업(Eco-technopia 21 project)”의 지원으로 이루어졌으며 이에 감사드립니다.

참고문헌

- Zhang, S., Fu, R., Wu, D., Xu, W., Ye, Q. and Chen, Z., 2004, Preparation and characterization of antibacterial silver-dispersed activated carbon aerogels, *Journal of Carbon*

- Science, Vol. 42, No. 15, pp. 3209-3216.
2. Park, S.-J. and Donnet, J.-B., 1998, Evaluation of the distribution function of adsorption site energies based on the Fermi-Dirac's law in a monolayer, *Journal of Colloid and Interface Science*, Vol. 200, pp. 46-51.
 3. Aggarwal, D., Goyal, M. and Bansal, R. C., 1999, Adsorption of chromium by activated carbon from aqueous, *Journal of Carbon Science*, No. 37, pp. 1989-1997.
 4. Kim, T. N., Feng, Q. L., Kim, J. O., Wu, J., Wang, H., Chen, G. C. and Cui, F. Z., 1998, Antimicrobial effects of metal ions (Ag^+ , Cu^{2+} , Zn^{2+}) in hydroxyapatite, *Journal of Materials Science*, Vol. 9, pp. 129-134.
 5. Kim, J.-S., 2007, Antibacterial activity of Ag^+ ion-containing silver nanoparticles prepared using the alcohol reduction method, *Journal of Korean Industrial and Engineering Chemistry*, Vol. 13, No. 4, pp. 718-722.
 6. Solioz, M. and Odermatt, A., 1995, Copper and silver transport by CopB-ATPase in membrane vesicles of enterococcus hirae, *Journal of Biological Chemistry*, Vol. 270, No. 16, pp. 9217-9221.
 7. Schreurs, W. J. A. and Rosenberg, H., 1982, Effect of silver ions on transport and retention of phosphate by *Escherichia coli*, *Journal of Bacteriology*, Vol. 152, No. 1, pp. 7-13.
 8. Silver, S., 2003, Bacterial silver resistance: Molecular biology and uses and misuses of silver compounds, *FEMS Microbiology*, Vol. 27, pp. 341-353.
 9. Percival, S. L., Bowler, P. G. and Russell, D., 2005, Bacterial resistance to silver in wound care, *Journal of Hospital Infection*, Vol. 60, No. 1, pp. 1-7.
 10. Liao, S. Y., Read, D. C., Pugh, W. J., Furr, J. R. and Russell, A. D., 1997, Interaction of silver nitrate with readily identifiable groups: Relationship to the Antibacterial Action of Silver Ions, *Letters in Applied Microbiology*, Vol. 25, pp. 279-283.
 11. Lee, C.-J., Kim, D.-Y. and Kim, B.-S., 2007, Study of anti-bacterial properties for impregnated activated carbon by silver nanoparticles, *Journal of Korean Industrial Engineering Chemistry*, Vol. 18, No. 4, pp. 396-399.
 12. P&I Corporation, 2006, Method and device for repairing powder on which nano metal, alloy, and ceramic particles are uniformly vacuum-deposited, Patent of PCT, PCT/KR2006/004167.