

유전체장벽방전 플라즈마 장치의 조작특성과 살균력

목철균* · 이태훈

경원대학교 식품생물공학과

Operational Properties and Microbial Inactivation Performance of Dielectric Barrier Discharge Plasma Treatment System

Chulkyoon Mok* and Taehoon Lee

Department of Food Science and Biotechnology, College of Engineering, Kyungwon University

Abstract

A dielectric barrier discharge plasma (DBDP) treatment system was fabricated and the optimum operating conditions for the plasma generation were determined in order to explore the potential of cold plasma as a non-thermal processing technology. The microbial inactivation performance of the system was also evaluated against *Staphylococcus aureus*. The system consisted of power supply, transformer, electrode assembly and sample treatment plate. The input power was 220 V single phase AC and amplified to 10.0-50.0 kV on a transformer. A pulsed sine wave of frequency 10.0-50.0 kHz was introduced to the electrode embedded in ceramic as a dielectric barrier material in order to generate plasma at atmospheric pressure. Higher currents and consequently greater power were required for the plasma generation as the frequencies increased. A homogeneous and stable plasma was generated at currents of 1.0-2.0 A, and frequencies of 32.0-35.3 kHz. The optimum electrode-gaps for the plasma generation were 1.85 mm without loaded samples. More power was consumed as the electrode-gaps increased. The practically optimum electrode-gap was, however, 2.65 mm when samples were treated on slide-glasses for microbial inactivation. The maximum temperature increase after 10 min treatment was less than 20°C, indicating no microbial inactivation effect by heat and thereby insuring a non-thermal method. The DBDP inactivation effect against *Staphylococcus aureus* increased linearly with treatment time up to 5 min, but plateaued afterward. More than 5 log reduction was achieved by 10 min treatment at 1.25 A.

Key words: plasma, dielectric barrier discharge, optimization, inactivation, *Staphylococcus aureus*

서 론

경제수준이 높아짐에 따라 보다 안전하고 질 좋은 식품에 대한 수요가 증가하고 있다. 소비자가 원하는 양질의 식품이란 신선하고 영양성분이 풍부하며, 맛, 향, 조직감 등 기호성이 높은 식품을 의미한다. 하지만 이러한 욕구는 제조, 가공 및 유통 과정의 경제성과 양립하기 어려울 뿐만 아니라 자칫하면 식품의 안전성을 위협하는 요인으로 작용할 수 있다. 식품의 안전성을 위협하는 인자에는 오염된 식품원료의 사용, 제조 및 가공 중 살균부족, 교차오염, 그리고 유통 과정 중의 2차 오염 등이 있다(Mok & Lee, 2009).

식품산업 현장에서 원료와 제품의 살균에 통상적으로 사용되는 방법은 스팀, 열탕, 열풍 등의 가열살균법이나, 이 방법은 에너지 소모가 크고, 열에 의한 영양성분 파괴뿐만 아니라 향, 맛, 색, 등 관능적 품질을 저하시키는 단점이 있다. 이를 극복하고 양질의 식품을 생산하기 위하여 식품업계에서는 비가열살균법에 대한 요구가 날로 증대되고 있다.

비가열살균법에는 혼연, 혼증, 첨가물 등을 사용하는 화학적 방법, 그리고 방사선, 전자빔, 초고압, 고전장펄스, 자외선, 저온플라즈마 등을 사용하는 물리적 방법이 있다. 화학적 살균법은 적용이 간단하고 경제적인 반면 사용하는 물질의 독성 때문에 천연상태의 식품을 선호하는 소비자들로부터 점차 외면 받고 있는 실정이며, 물리적 살균법은 방사선조사가 대표적으로 쓰이지만 방사선에 거부감과 막연한 불안감이 실용화에 걸림돌로 작용하고 있다. 최근에는 초고압기술이 비가열살균법으로 많이 연구되고 있고 일부 제품은 상용화되고 있으나 고가의 장비를 필요로 하므로 대기업에서 생산하는 일부 제품을 제외하고는 현장적용에 한계가 있다.

*Corresponding author: Chulkyoon Mok, Department of Food Science and Biotechnology, College of Engineering, Kyungwon University, San 65 Bokjeong-dong, Sujeong-gu, Seongnam-si, Gyeonggi-do, 461-701, Korea

Tel: +82-31-750-5403; Fax: +82-31-750-5273

E-mail: mokck@kyungwon.ac.kr

Received October 6, 2011; revised November 14, 2011; accepted November 15, 2011

이러한 제약을 극복하고자 저가의 장비로 처리가 가능한 물리적 방법에 대한 요구가 증대되고 있다. 이에 따라 비교적 저가의 시설을 사용하여 식품의 품질변화를 최소화하면서 생성물에 의한 2차 오염의 위험이 낮은 저온플라즈마에 대한 관심이 고조되고 있다(Mok & Song, 2010). 플라즈마는 전리된 기체로서 양이온과 전자가 거의 같은 밀도로 분포하여 전기적으로는 중성인 하전입자의 집단이다. 플라즈마는 들뜬상태의 이온, 자유라디칼, 전자, 광자 등을 포함하고 있고, 이온들의 천이과정에서 생성되는 자외선도 발생하며(Deng et al., 2007), 이들 물질은 생물학적 작용을 갖으므로 미생물을 사멸시킬 수 있다(Lerouge et al., 2001; Moisan et al., 2002).

저온 플라즈마는 처리대상 물체에서 심각한 온도상승 없이 세균, 바이러스 등 미생물을 불활성화 시키는 생물학적 작용을 나타내므로 위생 및 환경 분야에서 활용 가능성이 높으며, 스위치를 끄게 되면 활성 상태의 입자들이 곧바로 사라지므로 제어가 간단하고 잔류물질을 남기지 않는 장점이 있다(Montie et al., 2000; Becker et al., 2005). 통상 저온 플라즈마는 감압상태에서 다양한 가스를 사용하여 생성하거나, 대기압 상태의 공기 또는 가스를 글로우 방전하여 생성한다(Mok & Song, 2010).

감압플라즈마는 플라즈마 발생속도를 제어하기 쉽고 균일한 플라즈마 생성이 가능한 장점이 있으나 진공에 가까운 상태까지 압력을 낮추는 설비가 필요하고 연속식 처리가 어려운 제약이 있다. 이에 반해 대기압 하에서 유전체 물질로 감싼 전극을 사용하여 방전함으로써 에너지 밀도를 낮추는 유전체장벽방전 플라즈마(dielectric barrier discharge plasma, DBDP) 방식은 장비가 간단하고 연속처리가 가능하며 장치비가 크게 비싸지 않은 장점이 있다. 그러나 이러한 장점에도 불구하고 국내에서는 이에 관한 체계적인 연구가 이루어지지 않아 현장적용이 신속하게 진행되고 있지 못하는 실정이다. 이를 해결하기 위하여 유전체장벽방전 플라즈마 생성장치를 제작하고 조업조건이 플라즈마 발생에 미치는 영향을 조사하여 DBDP의 실용화에 필요한 기초 자료를 확립하고자 하였다.

본 연구에서는 온도와 플라즈마 강도를 조절할 수 있도록 주파수와 전극/시료처리(접지)판 간격의 조절이 가능하고, 처리시간을 조절할 수 있도록 처리판 이동속도를 조절할 수 있는 유전체장벽방전 플라즈마 처리장치를 제작하여 기계/전기적 특성을 시험하였고 표준균주를 대상으로 살균 특성을 조사함으로써 실제 향후 식품살균에 대한 적용 가능성을 타진하였다.

재료 및 방법

유전체장벽방전 플라즈마(DBDP) 처리장치

본 연구에서 제작한 DBDP 장치의 기본구조는 Fig. 1과

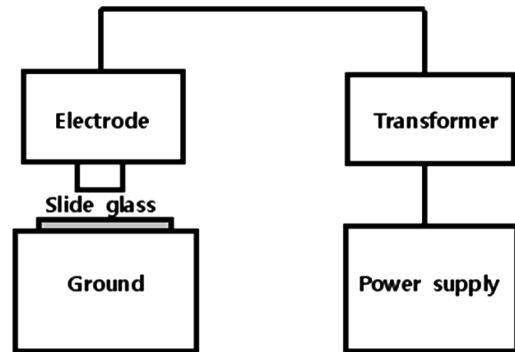


Fig. 1. Schematic diagram of dielectric barrier discharge plasma (DBDP) treatment system.

같이 주전원, 변압기, 전극, 시료처리판 등 네 부분으로 구성하였다. 전원은 220 V 교류 단상을 사용하였고, 변압기에서 10.0-50.0 kV가 되도록 증폭하고 주파수 10.0-50.0 kHz의 펄스형 구형파로 변조하여 전극에 인가하는 방식을 채택하였고, 소비전력은 최대 2 kW로 설계하였다. 전극은 유전체 장벽으로 작용하는 세라믹 블록 내에 장치하였고, 접지전극 겸 시료처리판으로 알루미늄판을 적용하였다. 각 부분의 주요 특성과 제원은 Table 1과 같다. 주파수를 변화시키면서 전류를 인가하여 플라즈마가 발생하도록 하고 플라즈마가 안정화된 후 전류계를 사용하여 전류를 측정하였다.

온도 측정

플라즈마가 생성되는 전극의 온도변화는 플라즈마 생성 주파수 및 처리시간 별로 적외선 온도계(TN408LC Thermo-Twin, ZyTemp, HsinChu, Taiwan)를 사용하여 측정하였다.

소비전력 측정

Table 1. Components and dimensions of DBDP treatment system.

Components	Characteristics	Values
Power supply	Electrical source	220 V AC, single phase
	Output voltage	10.0-50.0 kV
	Output frequency	10.0-50.0 kHz
	Wave form	Pulsed sine wave
	Maximum power	2 kW
Plasma generator	Electrode dimension	Length 22 cm×Width 2 cm
	Dielectric barrier material	Ceramic
	Cooling method	Air cooling
Treatment system	Ground electrode	Aluminum plate
	Moving mechanism	Linear sliding type
	Moving speed	0-5 cm/s

플라즈마 발생 주파수, 전류, 전극과 시료처리(접지)판 사이의 거리(이하 전극간격으로 칭함)에 따른 소비전력은 기계식 전력량계(WL13S 보통전력량계, LS산전, Anyang, Gyeonggi-do, Korea)를 사용하여 회전판의 회전속도를 측정하여 kWh로 환산하고 이를 작동시간으로 나누어 소비전력(W)을 산출하였다.

사용균주

본 실험에서 사용한 균주는 *Staphylococcus aureus* ATCC 25923 이었고, tryptic soy broth(BD Company, Le Pont de Claix, France)에서 증균배양(37°C, 20 hr)하여 사용하였다.

플라즈마 살균

Clean bench에서 증균배양한 배양액 20 µL를 200 µL 자동피펫(Proline Mechanical Pipette, Model 720070, Biohit Oyj., Helsinki, Finland)에 취한 후 slide glass (두께 1.0 mm)에 적하하고 tip 말단을 이용하여 직경 15 mm의 원형으로 분산시킨 후 상온에서 90 분간 건조하였다. DBDP 장치의 전극간격을 0.85-3.33 mm로 조절하고 시료처리판 위에 slide glass를 놓고 시료처리판을 움직여 전극 바로 밑에 시료가 위치하게끔 한 후 플라즈마 처리하였다. 플라즈마 처리가 완료된 시료는 처리판을 원위치로 이동시킨 후 slide glass를 회수하였다. 플라즈마 살균은 각각의 조건에서 3 회 반복하여 실시하였다.

균수측정

플라즈마 처리한 slide glass를 clean bench로 옮기고 멸균 생리식염수 10 mL를 담은 시험관 위에 위치한 후 자동피펫으로 생리식염수를 1 mL씩 흡입하여 slide glass 상의 균체를 씻어내어 시험관에 받는 조작을 5 회 반복하여 균체를 회수하였다. 회수된 균체 용액을 볼텍스교반기(Vortex Mixer, Model MaxiMix II, Barnstead International, Dubuque, Iowa, U.S.A.)를 사용하여 10 초간 교반한 다음 10 진 희석하여 표준평판법(KDFA, 2005)으로 생존균수를 계수하였다. *Staphylococcus aureus* 생육배지로는 Mannitol-Egg Yolk-Polymyxin (MYP) agar (BD Company, Le Pont de Claix, France)를 사용하였으며, 도말 후 37°C에서 20-24 시간 배양하고 집락수를 계수하고 희석배수를 곱하여 생균수를 계산하였다.

결과 및 고찰

DBDP 생성주파수에 따른 전류의 변화

DBDP 처리장치에 주파수에 연동한 전류를 인가함으로써 플라즈마를 생성하였다. 전압을 걸고 주파수를 변환하면 이에 따라 전류가 변화하게 되며 일정 수준 이상의 전류가 인가되면 전극과 접지판 사이에서 플라즈마가 발생한다. 따

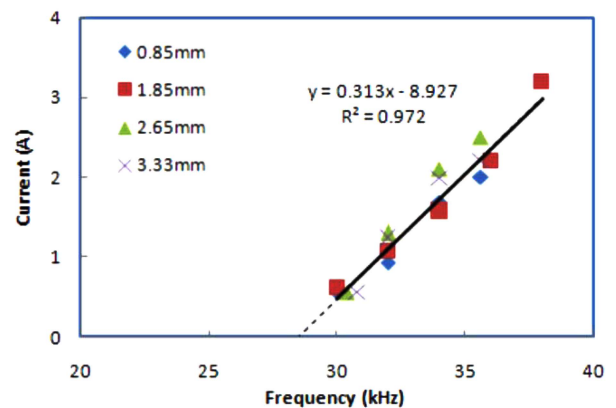


Fig. 2. Currents for DBDP generation at different frequencies and with electrode-gaps.

라서 본 DBDP 처리장치의 공정변수로 주파수(전류), 전극간격, 처리시간을 설정하여 실험하였다.

주파수를 달리하여 DBDP 생성할 때 전류의 변화는 Fig. 2와 같이 30 kHz 이상의 주파수에서 플라즈마가 생성되었으며, 전류세기는 주파수에 비례하여 직선적으로 증가하였다. 그러나 전극간격에 따른 전류의 차이는 크지 않았고 유사한 수준의 값을 보였다. 전극간격을 구분하지 않고 통합하여 구한 주파수별 전류의 회귀직선식은 $y = 0.313x - 8.927$ 이었으며, 이로부터 산출한 플라즈마발생 임계주파수는 28.52 kHz로 확인되었다. 즉, 본 DBDP장치에서는 주파수가 28.52 kHz 이상일 때만 플라즈마가 생성됨을 알 수 있었다.

한편 전극간격을 구분하여 회귀직선을 구한 결과를 보면 Table 2와 같이 모든 전극간격에서 전류-주파수 간의 직선성이 확인되었으며, 임계 주파수는 전극간격에 관계없이 28.11-28.85 kHz의 값을 보여 거의 일치하는 것으로 나타났다.

전류가 DBDP 생성에 미치는 영향

전극간격을 1.85 mm로 고정시키고 전류를 달리하여 생성한 DBDP의 성상은 Fig. 3과 같았다. 전류가 1.0 A 미만

Table 2. Regression equation of currents with respect to frequencies and critical frequencies for plasma generation at different electrode-gaps.

Electrode-gap (mm)	Regression equation ¹	Critical frequency (kHz)
0.85	$I = 0.27 F - 7.59$	28.11
1.85	$I = 0.31 F - 8.93$	28.81
2.65	$I = 0.38 F - 10.81$	28.45
3.33	$I = 0.34 F - 9.81$	28.85

¹ I : current (A)

F : frequency (kHz)


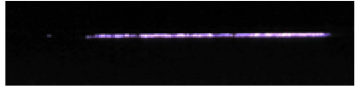


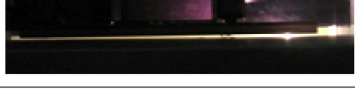
Current (A)	Appearance
0.5	
1	
1.5	
2	
> 2.3	

Fig. 3. Appearance of DBDP with different currents at 1.85 mm electrode-gap.

일 때는 전극 중 일부지점에서만 플라즈마가 발생한 반면, 1.0-2.0 A 범위의 전류를 통할 때는 전극 전반에 걸쳐 플라즈마가 생성되었다. 그러나 전류크기를 증가시켜 2.3 A 이상으로 하면 간헐적인 아크가 발생하였으며 균일한 플라즈마 생성이 어려웠다. 이로부터 전극간격 1.85 mm에서 DBDP 발생에 적합한 전류는 1.0-2.0 A로 확인되었다.

전극간격에 따른 DBDP 생성 주파수와 전류의 변화

전극간격별 DBDP 발생가능 주파수 범위는 Table 3과 같이 간격 0.85 mm와 1.85 mm인 때는 30.0-36.0 kHz에서 플라즈마가 발생한 반면 간격 2.65 mm와 3.33 mm인 때는 32.0-34.0 kHz 범위에서 플라즈마가 생성되어 전극간격이 좁을수록 DBDP 발생이 용이한 것으로 나타났다. 한편 전극간격에 따라 DBDP 생성에 필요한 전류세기는 0.85 mm에서는 0.51-2.13 A로 나타났고, 1.85 mm에서는 0.31-2.23 A로서 전류세기의 범위가 넓어졌다가 전극간격 2.65 mm 및 3.33 mm에서는 각각 1.35-2.11 A와 1.07-1.75 A를 보여 전극간격이 커짐에 따라 플라즈마 발생 전류범위가 좁아짐을 알 수 있었다.

Table 3. Changes in DBDP generating frequencies and required currents with electrode-gaps.

Electrode-gap (mm)	DBDP generating frequency (kHz)	Current (A)
0.85	30.0-36.0	0.51-2.13
1.85	30.0-36.0	0.31-2.23
2.65	32.0-34.0	1.35-2.11
3.33	32.0-34.0	1.07-1.75

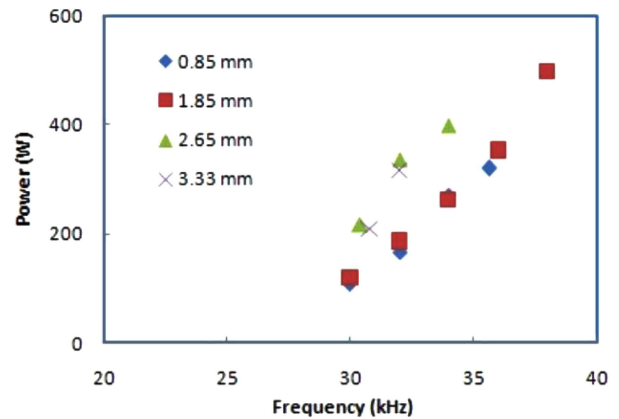


Fig. 4. Consumed power for DBDP generation at different frequencies and electrode-gaps.

DBDP 생성 소요전력

전극간격과 주파수를 달리하여 DBDP를 생성할 때 소요되는 전력량 측정결과는 Fig. 4와 같이 주파수에 비례하여 소비전력이 높아졌다. 전극간격에 따른 전력소비량의 변화를 보면 전극간격 0.85 mm와 1.85 mm 간의 차이는 크지 않았으며, 2.65 mm와 3.33 mm 사이의 차이도 미미한 것으로 나타났다. 그러나 0.85/1.85 mm와 2.65/3.33 mm의 두 그룹 간에는 뚜렷한 차이를 보였다. 즉 전극간격 0.85 mm와 1.85 mm에서는 비교적 낮은 전력소모를 보인 반면 2.65 mm 이상에서는 전력소비량이 눈에 띄게 높아졌다. 이러한 결과 역시 DBDP 생성에 적합한 간격은 0.85-1.85 mm임을 보여주고 있다.

Tanino et al.(2007)은 유리관을 유전체로 사용한 전극을 부착하여 제작한 DBDP 장치를 활용한 실험에서 전극간격 2 mm, 주파수 27~34 kHz로 플라즈마를 생성할 때 230 W를 소비하는 것으로 보고하였는데, 이는 본 실험에서 사용한 장치의 성능과 유사한 수치이다.

DBDP 처리 시 온도상승

전류세기에 따른 처리판의 온도상승을 조사한 결과, Fig. 5와 같이 0.5 A와 1.0 A의 경우는 온도상승이 미미하여 5분 처리 후 3°C 정도의 온도상승이 있었다. 그러나 1.5 A의 경우는 3분까지는 온도가 지속적으로 증가하여 최대 15°C 정도의 상승을 보였고, 이후에는 일정하게 유지되었다. 전류세기 2.0 A의 경우는 초기 2분 동안 20°C 정도의 상승을 보인 후 일정하게 유지되었다. 이는 상온(25°C)에서 DBDP 처리를 시작할 경우 전류 2.0 A에서도 최대 45°C까지만 상승함을 의미하므로 가열에 의한 생물학적 효과는 무시할 수 있는 것으로 확인되었다. 따라서 DBDP 처리는 비가열처리기술로 사용할 수 있음을 알 수 있었다.

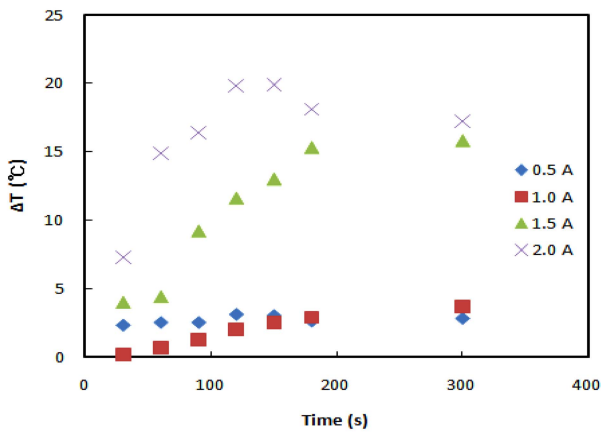


Fig. 5. Temperature increases by DBDP treatment at different currents.

DBDP를 이용한 *Staphylococcus aureus* 살균

앞서 살펴본 바와 같이 DBDP 생성에 가장 적합한 전극 간격은 0.85~1.85 mm이었으나, 두께 1.0 mm의 slide glass 위에 도말하여 건조한 균체배양액을 처리하기 위하여 전극 간격을 2.65 mm로 조정하여 처리하였다. 전류세기를 달리 하여 *Staphylococcus aureus*를 DBDP 살균한 결과 Fig. 6과 같이 처리시간 및 전류세기에 따라 살균효과가 커졌다. 처리시간에 따른 살균치($\log(N_0/N)$)의 변화양상은 처리시간 5분까지는 직선적인 증가를 보이다가 이후 완만하게 증가하는 경향을 보였다. 전류세기를 달리하여 5분간 처리한 경우 살균치는 전류세기 0.75 A와 1.0 A에서 각각 2.18과 3.33을 보인 반면 1.25 A에서는 3.73으로 높아졌다. 처리시간을 10분으로 늘렸을 경우 전류세기 0.75 A, 1.0 A, 1.25 A에서의 살균치는 각각 2.91, 3.94, 5.38을 나타내었다.

플라즈마에 의한 미생물 사멸은 생성된 자외선에 의한 DNA변형(UV inactivation), 자외선 광자에 의한 화학결합 파괴로 생성되는 휘발성 물질의 방출(photodesorption), 플라즈마로부터 생성된 반응성 화합물의 흡착 반응(etching)

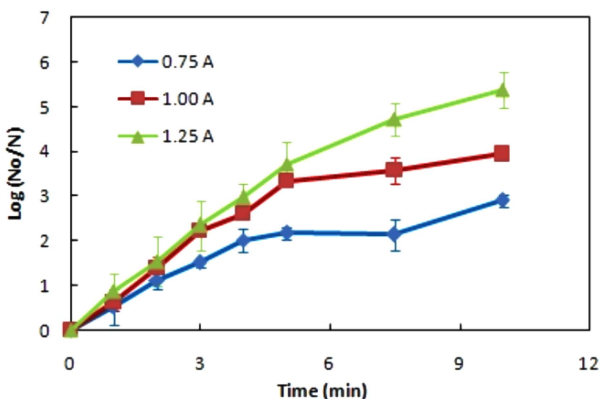


Fig. 6. DBDP inactivation of *Staphylococcus aureus* at different currents.

등에 기인하는 것으로 알려져 있다(Moisan et al., 2002). Tanino et al.(2007)은 유리관을 유전체로 사용한 전극을 사용하여 *Bacillus subtilis*를 대상으로 5-6 log 감소를 확인한 바 있으며, 건조 상태의 균체보다 젖은 상태에서 살균효과가 큼을 보고하였다.

본 연구 결과 연속처리가 가능한 실용적인 DBDP장치 제작이 가능함을 확인하였고, 이를 활용한 미생물 살균효과를 검증하였으며, 장시간 플라즈마 처리 시에도 온도상승이 크지 않아 향후 다양한 식품 또는 식품이 접촉하는 물체의 표면살균을 위한 비가열기술로서 활용이 기대된다.

요 약

비열살균기술로서 저온플라즈마 활용 가능성을 탐색하고자 유전체장벽 방전 플라즈마(DBDP)생성장치를 제작하여 최적 플라즈마생성 조건을 도출하고 *Staphylococcus aureus*를 대상으로 살균성을 조사하였다. DBDP생성장치는 전력공급장치, 변압기, 전극, 시료처리부 등 네 부분으로 구성하였다. 인가전압은 단상 200 V AC를 사용하고, 변압기를 통하여 10.0-50.0 kV로 변환하고 10.0-50.0 kHz의 주파수의 펄스 구형파를 유전체인 세라믹 블록 내에 장치한 전극에 투입함으로써 상압에서 플라즈마를 생성하였다. 주파수를 올림에 따라 높은 전류가 유입되었고, 이에 비례하여 전력소비량이 증가하였다. 전류세기 1.0-2.0 A, 주파수 32.0-35.3 kHz 범위에서 균일하고 안정적인 플라즈마 발생이 이루어졌으며 시료를 투입하지 않은 상태에서의 최적 전극간격은 1.85 mm 이었다. 전극간격을 높임에 따라 소비전력이 증가하였으나 시료 처리에 적합한 전극간격은 2.65 mm였다. DBDP 처리에 의한 온도상승은 최대 20°C에 불과하여 열에 의한 생물학적 효과는 무시할 수 있었으며 따라서 비열기술임이 확인되었다. *Staphylococcus aureus*를 대상으로 DBDP 처리할 경우 초기 5분 동안은 살균치가 직선적인 증가를 보이다가 이후 다소 완만해지는 경향을 보였으며 1.25 A에서 10분간 처리 시 살균치는 5.0을 상회하였다.

감사의 글

본 연구는 농림수산식품부 농림수산식품연구개발사업과 농촌진흥청 국책기술개발사업의 지원으로 이루어진 것으로서 이에 감사드립니다.

참고문헌

Becker N, Schmidt M, Viggiano AA, Dresslar R, Williams S. 2005. Air plasma chemistry. In: Becker KM, Kogelschartz U, Schoenback KH, Barker RJ (eds.), Non-equilibrium Air Plasmas

- at Atmospheric Pressure. IOP Publishing Ltd., London, England, pp. 124-182.
- Deng S, Ruan R, Mok C, Huang G, Lin X, Chen P. 2007. Inactivation of *Escherichia coli* on almonds using nonthermal plasma. *J. Food Sci.* 72(2): M62-M65.
- KFDA. 2005. Food Codes Vol. II. Korea Food and Drug Administration, Seoul, Korea, p. 97.
- Lerouge S, Wertheimer MR, Yahia L. 2001. Plasma sterilization: a review of parameters, mechanisms, and limitations. *Plasmas Polym.* 6: 175-188.
- Moisan M, Berbeau J, Crevier MC, Pelletier J, Philip N, Saoudi B. 2002. Plasma sterilization: methods and mechanisms. *Pure Appl. Chem.* 74: 349-358.
- Mok C, Lee NH. 2009. Ultraviolet inactivation of *Escherichia coli* in stainless steel cups. *Food Eng. Prog.* 13: 122-129.
- Mok C, Song DM. 2010. Low-Pressure Plasma Inactivation of *Escherichia coli*. *Food Eng. Prog.* 14: 202-207.
- Montie TC, Kelly-Winternberg K, Roth JR. 2000. An overview of research using the one atmosphere uniform glow discharge plasma (OAUGDP) for sterilization of surfaces and materials. *IEEE Trans. Plasma Sci.* 28: 41-50.
- Tanino M, Xilu W, Takashima K, Katsura S, Mizuno A. 2007. Sterilization using dielectric barrier discharge at atmospheric pressure. *Int. J. Plasma Environ. Sci. Technol.* 1: 102-107.