

코로나방전플라즈마제트장치의 조업특성과 살균력

목철균* · 이태훈
가천대학교 식품생물공학과

Operational Characteristics and Microbial Inactivation Performance of Corona Discharge Plasma Jet System

Chulkyoon Mok* and Taehoon Lee

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

Abstract

A corona discharge plasma jet (CDPJ) treatment system was fabricated and its operation characteristics were determined. Also the microbial inactivation efficacy of CDPJ was evaluated in order to explore its potentialities as a non-thermal sterilization technology. The system consisted of power supply, transformer, electrode assembly, air blower, and sample treatment plate. Plasma was generated by corona discharge between tungsten lid electrodes with air stream blowing at high speed resulting in downward plasma ejection as a jet. Higher currents and, consequently, greater power were required for the plasma generation as the frequencies increased. Plasmas were generated at a current greater than 1.0 A and frequencies over 32.5 kHz. Stable plasma jets were acquired when the current and the frequency exceeded 1.5 A and 40.0 kHz. Plasma jet length was extended with the current strength. The maximum temperature increased after a 2 min treatment was less than 25°C regardless of the current strength, indicating that the technology belonged to the non-thermal processing category. The CDPJ inactivation effect against *Escherichia coli* increased with the current strength. More than 4.5 log reduction was achieved by 1 min treatment at 1.5 A. The inactivation pattern fitted to a 2-stage 1st order reaction model.

Key words: corona discharge plasma jet (CDPJ), operation characteristics, inactivation, *Escherichia coli*

서 론

품질이 우수하고 위생적인 식품의 생산과 소비는 인류의 건강과 삶의 질을 높이기 위한 가장 기본적이며 현실적인 방안이다. 최근 소비자는 신선하고 영양성분이 풍부하며, 맛, 향, 조직감 등 기호성이 높은 식품을 요구하지만 이러한 요구는 한편으로는 식품의 안전성을 위협하는 요인으로 작용한다.

식품안전을 확보하기 위해 식품산업 현장에서는 통상 스팀이나 열수를 사용하여 살균하고 있으나 열에 의한 영양성분 파괴뿐만 아니라 기호품질을 저하시키는 단점이 있다. 이를 극복하기 위한 방안으로 비가열살균기술이 대안이 될 수 있으며, 방사선조사, 전자빔조사, 초고압, 고전장펄스,

자외선, 저온플라즈마 등이 이 범주에 속한다. 비가열살균 기술로서 방사선조사가 가장 보편적으로 이용되고 있으나 고가의 시설이 필요하고 소비자의 방사선에 거부감과 불안이 이 기술의 확대적용을 가로막고 있다. 방사선조사에 있어서 초고압기술이 많이 연구되었고 일부 제품은 상용화되었으나 이 역시 고가의 장비를 필요로 하므로 일부 제품에 국한하여 이용되고 있는 실정이다.

이러한 제약을 극복하고자 현실적인 가격의 장비와 유지비용으로 처리가 가능한 새로운 비가열살균기술에 대한 요구가 증대되고 있으며, 이에 따라 비교적 저가의 장치를 사용하여 품질변화 및 처리 시 생성되는 물질에 의한 2차 오염의 위험이 적은 저온플라즈마에 대한 관심이 고조되고 있다(Mok & Song, 2010; Mok & Lee, 2011).

플라즈마는 전리된 기체를 통칭하며 양이온과 전자가 거의 같은 밀도로 분포하므로 전기적으로는 중성을 띤다. 플라즈마는 다양한 들뜬 상태의 이온, 자유라디칼, 전자, 광자 등을 포함하며 이온들의 천이과정에서 생성되는 자외선도 존재한다(Deng et al., 2007). 이러한 다양한 물질들의 복합적인 생물작용에 의해 미생물에 대한 살균력을 나타낸다(Lerouge et al., 2001; Moisan et al., 2002).

*Corresponding author: Chulkyoon Mok, Department of Food Science and Biotechnology, College of Engineering, Gachon 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@gachon.ac.kr

Received January 10, 2013; revised March 21, 2013; accepted August 19, 2013

저온 플라즈마는 처리대상 물체에서 심각한 온도상승 없이 세균, 바이러스 등 미생물을 불활성화 시키는 생물학적 작용을 나타내고, 스위치를 끊으면 활성 입자들이 곧바로 소멸되므로 제어가 간단하고 잔류물질을 남기지 않는 장점이 있다(Montie et al., 2000; Becker et al., 2005). 통상 저온 플라즈마는 감압상태에서 생성하거나, 대기압 상태의 공기 또는 가스를 글로우방전하여 생성한다(Mok & Song, 2010).

감압플라즈마(low pressure discharge plasma, LPDP)는 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 통하여 방전하여 에너지 밀도를 낮추는 유전체장벽방전플라즈마(dielectric barrier discharge plasma, DBDP) 방식은 장비가 간단하고 연속처리가 가능한 장점이 있지만 전극간의 간격에 제한이 있으므로 통상 판상의 물체를 대상으로 사용한다(Mok & Lee, 2012).

따라서 본 연구에서는 LPDP 및 DBDP의 제약을 극복하기 위하여 코로나방전에 의한 플라즈마를 생성하고 전극 사이에 다량의 공기를 빠른 속도로 송풍하여 플라즈마 온도를 낮추고 동시에 생성된 플라즈마를 제트형태로 분출하는 코로나방전플라즈마제트(corona discharge plasma jet, CDPJ)장치를 개발하여 대상물체의 크기 및 형태에 따른 제약을 극복하고 표면에서의 플라즈마 접촉을 개선함으로써 플라즈마 응용가능성을 확대하고자 하였다. 이를 위해 CDPJ 장치의 주파수에 따른 전류변화를 측정하고 전류세기에 따른 CDPJ 길이, 전력소비량, 온도변화 등 조업특성을 조사하였다. 아울러 *Escherichia coli*에 대한 살균력을 검정하여 비가열살균기술로서의 적용가능성을 검토하였다.

재료 및 방법

코로나방전플라즈마제트(CDPJ) 장치

본 연구에서 제작한 CDPJ 장치의 기본 구조는 Fig. 1과 같이 전력공급장치, 변압기, 전극, 송풍기, 시료처리부 등 다섯 부분으로 구성하였다. 세라믹 차폐체(실드) 내에 한 쌍의 텅스텐전극을 설치하고 송풍기를 이용하여 다량의 공기를 유입하면서 전극 사이에 전압 10.0-20.0 kV의 직류전기를 10.0-45.0 kHz 구형파 펄스형태로 인가하여 플라즈마를 발생시켰다. 이 때 전극 사이를 통과하는 송풍압력을 이용하여 플라즈마를 전극의 하부방향으로 0.8 m/s의 속도로 밀어냄으로써 플라즈마제트를 생성하였다. CDPJ 토출구 하부에 설치된 시료처리판 위에 시료를 놓고 토출구-시료간 거리(이하 토출거리라 칭함)와 전류세기를 조절하여 일정시간 동안 플라즈마를 처리하였다.

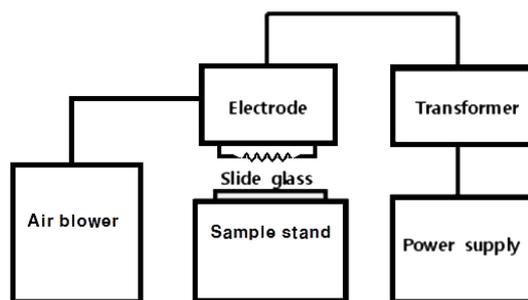


Fig. 1. Schematic diagram of CDPJ system.

표준균주

본 연구에 사용한 모델세균으로는 *Escherichia coli* ATCC 25922를 사용하였으며, tryptic soy broth(Becton, Dickinson and Company(BD Co.), Sparks, MD, USA)에 접종하여 37°C에서 24시간 배양한 대수기 후반부의 균주를 사용하였다.

온도 측정

플라즈마 처리지점의 시간에 따른 온도변화는 적외선온도계(TN408LC ThernaTwin, ZyTemp, HsinChu, Taiwan)를 사용하여 측정하였다. 전류세기와 토출거리를 독립변수로 한 온도상승치에 대한 2차 회귀방정식을 SAS(SAS Institute, 2004)를 사용하여 분석하였다.

소비전력 측정

플라즈마 발생 시 소비전력은 기계식 전력량계(WL13S, LSIS Co., Ltd., Anyang, Korea)를 사용하여 회전판의 회전속도를 측정하여 kWh로 환산하고 이를 작동시간으로 나누어 평균소비전력(W)을 산출하였다.

플라즈마 살균

CDPJ 토출구 높이를 조절하여 토출거리를 25 mm로 고정하고 *E. coli* 배양액(균수 10⁹-10¹⁰ CFU/mL) 10 μL를 접종하여 건조한 슬라이드글라스를 CDPJ 장치의 처리판 위에 위치하고 일정시간 처리하였다.

균수 측정

균수 측정은 표준평판법(KFDA, 2005)으로 생존균수를 계수하였다. 플라즈마 처리 후 clean bench 내에서 시험관에 담긴 멸균 생리식염수 10 mL를 사용하여 자동피펫으로 슬라이드글라스로부터 균체를 씻어낸 후 시험관에 다시 회수하는 방식을 5회 이상 반복하여 실시하고 회수액을 단계적으로 희석하였다. 희석액 100 μL를 eosin methylene blue agar(BD Co., Seoul, Korea)에 도말하여 37°C에서 24시간 배양한 후 형성된 집락을 계수하였다.

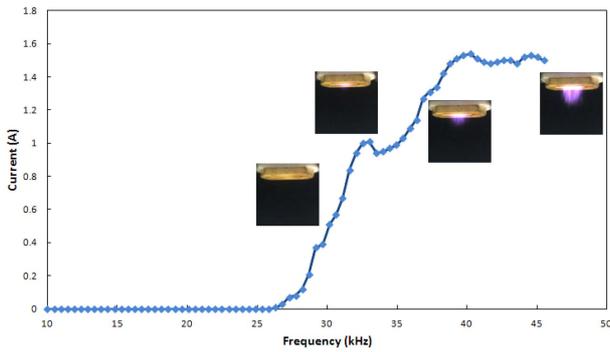


Fig. 2. Changes in currents and plasma appearance with respect to frequency.

결과 및 고찰

주파수별 전류변화 및 CDPJ 특성

본 연구에서 시도한 CDPJ는 좁은 전극 사이에 고주파 전류를 인가하여 플라즈마를 생성하고 전극 사이에 고속으로 공기를 주입함으로써 공기에 의한 냉각과 동시에 제트 형태의 저온 플라즈마를 방출하는 방식이다. 이러한 방식은 대상물체의 형태와 크기에 대한 제약이 없을 뿐만 아니라 제어가 간단하고 플라즈마를 이동하며 처리할 수 있는 융통성을 보유하며 동시에 기류에 의한 교반효과에 의해 활성입자와 대상물체 간의 접촉을 증진할 수 있다.

CDPJ 장치의 작동범위를 파악하고자 주파수에 따른 전류세기의 변화를 조사하였고 각 조건에서 플라즈마를 발생을 관찰한 결과 Fig. 2와 같이 26 kHz부터 전류가 측정되기 시작하였으며 실제 플라즈마 생성은 32.5 kHz 이상에서 관측되었다. 플라즈마 생성 시점에서 인가된 전류의 세기는 1.0 A를 약간 상회하였다. 이후 40.0 kHz까지 주파수가 증가함에 따라 플라즈마제트 크기가 증가하였으며 전류세기도 비례하여 높아졌다. 주파수 40.0 kHz 이상에서는 전류는 큰 변화 없이 1.55 A 내외로 유지되었으며 플라즈마도 일정한 성상을 안정되게 유지하였다.

플라즈마제트에 관한 연구는 Xu et al.(2006) Kuwahara et al.(2012) 등에 의해 시도된 바 있다. Xu et al.은 생성기체로 아르곤 가스를 사용하였으며 동심원 전극을 사용하여 15.9 kHz에서 플라즈마제트를 생성한 반면, Kuwahara et al.(2012)은 공기를 사용하고 2선 전극을 사용하여 20 kHz에서 플라즈마제트를 생성하였다. 이들 연구결과에 비해 본 연구에서 개발한 CDPJ 장치는 더 높은 주파수에서 안정된 플라즈마제트가 생성되었다.

온도변화

CDPJ 처리에 의한 처리지점의 온도는 Fig. 3과 같이 전류세기와 처리시간에 따라 상승하였다. 토출거리를 25 mm로 하여 5분간 처리했을 때 전류 1.0 A와 1.25 A에서는 최

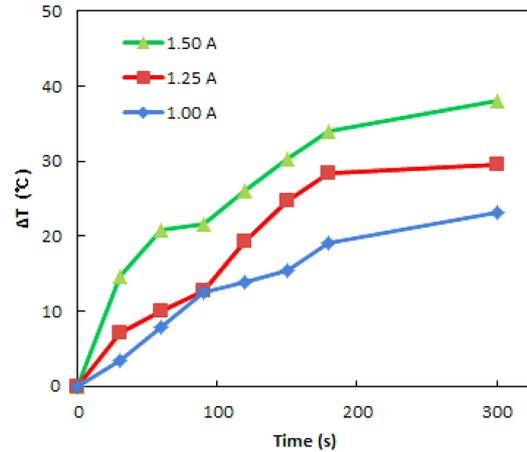


Fig. 3. Temperature increase by CDPJ at different currents at 25 mm span length.

대 30°C 정도의 온도상승을 보였다. 반면에 1.5 A에서는 5분간 처리 후 40°C 정도의 상승을 나타냈다. 그러나 처리시간 2분 이내의 온도상승은 모든 전류조건에서 25°C 이하의 상승을 보임으로써 초기온도 25°C에서 2분 이하의 단시간 처리는 온도가 최대 50°C 이하로 유지됨을 알 수 있었다. 이 경우 단백질변성온도에 미달하므로 비가열공정에 부합하는 것으로 확인되었다. 한편 Xu et al.(2006)와 Kuwahara et al.(2012)도 플라즈마제트 생성 시 본 연구결과와 유사한 온도상승을 보고하였다.

Fig. 4는 전류세기 1.25 A에서 토출거리에 따른 처리시간별 온도상승치를 보여주고 있다. 토출거리가 짧을수록, 즉 플라즈마와 생성지점과 가까울수록 온도가 높아져 토출구 하부 15 mm 지점은 5분간 처리 후 50°C의 온도상승을 보였다. 그러나 토출거리를 25 mm 이상으로 유지하며 처리할 경우는 최대 30°C 정도의 상승을 보였다. 특히 처리시간을 2분 이하로 하면 가열에 의한 대상물체의 변성은 거

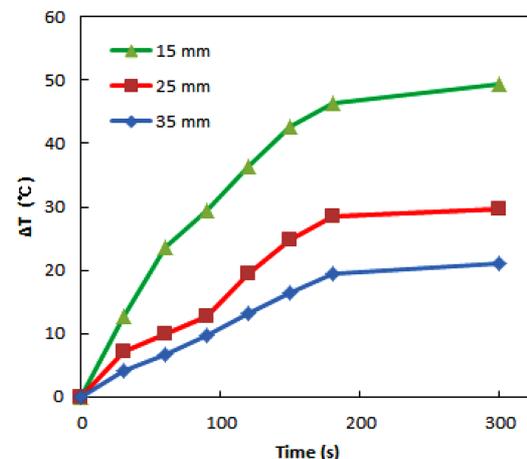


Fig. 4. Temperature increase by CDPJ at different span length at 1.25 A.

의 없을 것으로 추정되었다.

토출거리와 전류세기를 달리하여 CDPJ를 2분간 처리한 후의 온도변화를 전류세기와 토출거리의 2 차 함수로 회귀 분석한 결과 아래와 같은 회귀방정식이 도출되었다.

$$\Delta T = -3.9998 + 0.158L + 59.800C - 0.008L^2 - 0.440L \cdot C - 12.800C^2 (R^2 = 0.987)$$

여기서 ΔT : temperature increase(°C)

C: current(A)

L: span length(mm)

소비전력

CDPJ 생성에 소요되는 전력량은 Fig. 5에 나타나 있다. 먼저 송풍기만을 가동하였을 때 전력소비량은 107 W이었다. 송풍기를 가동한 상태에서 전류세기를 달리하여 CDPJ

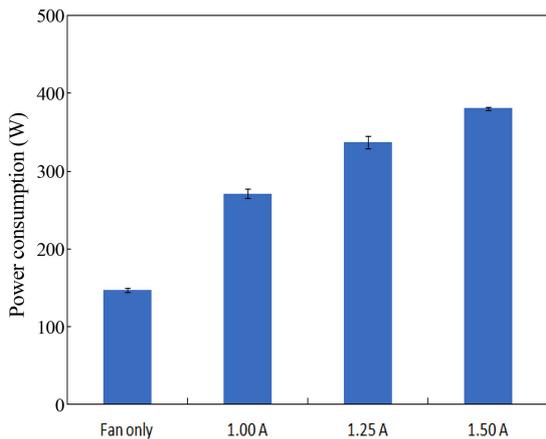


Fig. 5. Consumed power for CDPJ generation at different currents.

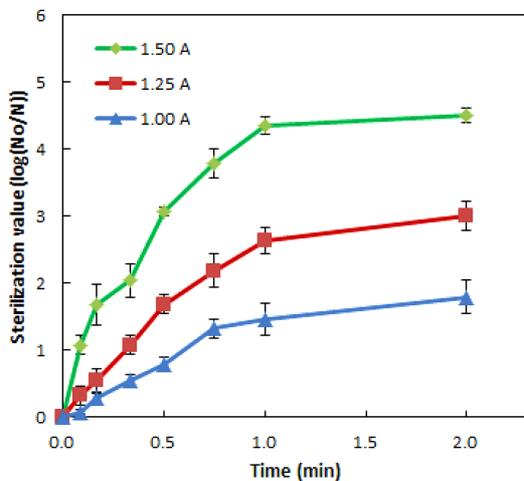


Fig. 6. Inactivation pattern of Escherichia coli by CDPJ at different currents.

를 생성할 때 소비되는 총 전력소비량은 1.0, 1.25, 1.5 A 에서 각각 286, 333, 353 W이었다. 따라서 CDPJ 생성에만 소비되는 전력은 각각 179, 226, 246 W임을 알 수 있었다.

Escherichia coli 살균

토출거리 25 mm에서 전류세기에 따른 CDPJ의 E. coli 살균결과를 1 차 반응에 의거하여 해석한 결과는 Fig. 6과 같다. 살균치 1-1.5까지는 처리시간에 따라 살균치가 직선적으로 증가하다가 이후 살균효과가 감소하는 경향을 보였는데 이러한 경향은 LPDP와 DBDP 등 기존의 플라즈마 살균 시에도 관측된 바 있다(Mok & Song, 2010; Mok & Lee, 2012).

살균효과는 전류세기에 비례하여 높아져 1.0, 1.25, 1.5 A 에서 1분간 처리할 경우 각각 1.5, 2.5, 4.5 log 정도의 살균효과를 보였다. 이러한 결과는 LPDP(Mok & Song, 2010)보다 우수한 살균력을 나타내었으며, DBDP(Mok & Lee, 2011; 2012)와 견줄만한 살균력을 보여주고 있다. 이로써 CDPJ는 기존의 플라즈마 생성방식에 비해 우수하거나 동등한 생물학적 효과를 가지며 대상물체의 모양과 크기에 따른 제약을 극복할 수 있어 작업성을 획기적으로 개선할 수 있을 것으로 사료된다.

CDPJ는 살균대상 물체의 특성을 변화시킬 만큼의 온도 상승 없이 미생물을 사멸시킬 수 있으므로 향후 다양한 처리조건과 대상 미생물에 대한 적용시험을 통하여 기구표면 등 물체뿐만 아니라 식품의 표면살균과 안전성 향상을 위한 활용이 기대된다.

요 약

코로나방전플라즈마제트(CDPJ) 생성장치를 제작하여 조업특성을 조사하고 비가열살균기술로서의 활용가능성을 탐색하고자 E. coli를 대상으로 살균성능을 조사하였다. CDPJ장치는 전력공급장치, 변압기, 전극, 송풍기, 시료처리부 등 다섯 부분으로 구성하였다. 전압 10.0-20.0 kV의 직류전기를 10.0-45.0 kHz 구형과 펄스형태로 텅스텐리드 전극에 투입함으로써 코로나방전 플라즈마를 생성하고 동시에 전극사이로 강한 공기를 주입함으로써 하부방향으로 토출하는 플라즈마제트를 생성하였다. CDPJ 처리는 플라즈마 토출구 하부에 처리대상 물체를 위치하고 일정시간 처리하는 방식으로 시행하였다. 주파수를 높일수록 다량의 전류가 유입되었고, 비례하여 전력소비량도 증가하였다. 플라즈마 생성을 위한 임계전류는 1.0 A, 임계주파수는 32.5 kHz이었으며, 1.5 A 이상 40.0 kHz 이상에서 안정적인 플라즈마제트가 생성되었다. 플라즈마제트의 길이는 전류에 따라 증가하였고, 2분 이하 처리 시 대상물체의 표면온도 상승은 25°C를 하회하였다. E. coli 살균력은 전류세기에 비례하여 증가하였고, 전류 1.5 A에서 1분간 CDPJ처리

에 의해 4.5 log 이상의 살균효과를 보였으며, 살균패턴은 2 단계 1 차 반응으로 확인되었다.

감사의 글

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

참고문헌

- Becker N, Schmidt M, Viggiano AA, Dresslar R, Williams S. 2005. Air plasma chemistry. In: Non-equilibrium Air Plasmas at Atmospheric Pressure. Becker KM, Kogelschartz U, Schoenback KH, Barker RJ (eds.). 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: M62-M65.
- KFDA. 2005. Food Codes Vol. II. Korea Food and Drug Administration, Seoul, Korea, p. 97.
- Kuwahara T, Kuroki T, Yoshida K, Saeki N, Okubo M. 2012. Development of sterilization device using air nonthermal plasma jet induced by atmospheric pressure corona discharge. *Thin Solid Films* 523: 2-5.
- 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, Saudi B. 2002. Plasma sterilization: methods and mechanisms. *Pure Appl. Chem.* 74: 349-358.
- Mok C, Song DM. 2010. Low-pressure plasma inactivation of *Escherichia coli*. *Food Eng. Prog.* 14: 202-207.
- Mok C, Lee T. 2011. Operational properties and microbial inactivation performance of dielectric barrier discharge plasma treatment system. *Food Eng. Prog.* 15: 398-403.
- Mok C, Lee T. 2012. Dielectric barrier discharge plasma inactivation of *Escherichia coli*. *Food Eng. Prog.* 16: 33-39.
- Montie TC, Kelly-Wintenberg 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.
- SAS Institute, Inc. 2004. SAS/STAT 9.1 User's Guide. SAS Institute, Cary, NC, USA.
- Xu L, Liu P, Zhan RJ, Wen XH, Ding LL, Nagatsu M. 2006. Experimental study and sterilizing application of atmospheric pressure plasmas. *Thin Solid Films* 506-507: 400-403.