



Title	Numerical analyses of chemical reaction dynamics in plasma-irradiated phosphate-buffered saline (PBS) solutions
Author(s)	Alfianto, Enggar
Citation	大阪大学, 2025, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.18910/103211">https://doi.org/10.18910/103211</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

## Abstract of Thesis

Name ( ALFIANTO ENGGAR )	
Title	<p>Numerical analyses of chemical reaction dynamics in plasma-irradiated phosphate-buffered saline (PBS) solutions          (プラズマ照射されたリン酸緩衝生理食塩水 (PBS) 溶液における化学反応ダイナミクスの数値解析)</p>
<p><b>Abstract of Thesis</b></p> <p>The interaction between liquids and plasmas has been studied extensively in recent decades, driven by the burgeoning applications of atmospheric-pressure plasmas to the fields of medicine and biology. Plasma-based medical therapies necessitate a thorough understanding of plasma-liquid interactions, as most living cells are enveloped by fluids that mediate the plasma's contact with cells. Plasma interaction with liquids generates a plethora of reactive oxygen and nitrogen species (RONS). RONS are typically categorized into fast-reacting and slow-reacting species based on their reaction rates. Observation of fast-reacting RONS in a liquid phase, however, poses significant experimental challenges because their reactions are too fast to be observed optically. Furthermore, if fast-reacting RONS enter the liquid from the gas phase, their reactions typically take place in a very thin layer with a depth of about 1 <math>\mu\text{m}</math> at the gas-liquid interface (i.e., the liquid surface). Therefore, for a better understanding of the dynamics and chemical reactions of RONS in a liquid phase, sophisticated computational simulations are needed to unravel the intricate mechanisms of plasma-liquid interactions.</p> <p>To investigate the critical reaction pathways in plasma-liquid interactions, this study utilized two simulation methodologies: a global (0-dimensional or 0D) model focusing on liquid-phase chemical reactions and a 1D model incorporating liquid-phase reactions and transport phenomena. The liquid of interest in this study was phosphate-buffered saline (PBS), in which the pH value stays at 7, and chlorine ions <math>\text{Cl}^+</math> typically produce hypochlorous acid (HOCl) when the solution is exposed to a plasma. This study initially investigated the influence of charge-neutral RONS generated in plasmas on chemical reactions within a PBS solution. Subsequently, the impact of time-dependent fluxes of electrically charged species (i.e., electrons and ions) on chemical reactions in a PBS solution was examined.</p> <p>The global model investigation of neutral species unraveled two crucial reaction pathways leading to hydrogen peroxide <math>\text{H}_2\text{O}_2</math> decomposition by <math>\text{Cl}^+</math> in PBS solutions; one is the “direction decomposition of hypochlorite ion <math>\text{ClO}^-</math>” and the other is the “chlorine monoxide <math>\text{ClO}</math> cycle.” The 1D reaction-transport simulation also found that these were the main decomposition mechanisms for <math>\text{H}_2\text{O}</math> in a PBS solution, providing spatial resolution of reaction events within the solution. The study also examined liquid-phase chemical reaction dynamics for pulsed plasma discharges and demonstrated that the influxes of electrons and ions to a PBS solution led to the generation of stable chemical species such as <math>\text{H}_2\text{O}_2</math>, <math>\text{NO}_2</math>, and <math>\text{NO}_2^-</math>. Although electrons and ions are typically fast-reacting species, the overall reactions were found to be slow, and, therefore, pulsed discharges and steady-state fluxes of charged species caused similar effects on the generation of slow-reacting stable chemical species in a PBS solution.</p>	

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

氏名 ( ALFIANTO ENGGAR )		
	(職)	氏名
論文審査担当者	主査 准教授	吉村 智
	副査 教授	森川 良忠
	副査 教授	桑原 裕司
	副査 准教授	北野 勝久
論文審査の結果の要旨		
<p>本論文は、数値シミュレーションによるプラズマ液体相互作用の解析に関するものである。液体とプラズマの相互作用は、近年、特に大気圧プラズマの医療や生物学分野への応用の拡大に伴い、盛んに研究されている。生体細胞は基本的に液体に浸されており、プラズマと生体細胞の接触は、この液体に仲介される。このため、プラズマと生体の相互作用を理解するには、まず、プラズマと液体の相互作用を深く理解することが必要である。プラズマが液体と相互作用すると、多種多様な活性酸素・窒素種 (RONS : Reactive Oxygen and Nitrogen Species) が生成される。RONS は、その反応速度に基づいて高速反応性種と低速反応性種に分類される。高速反応性 RONS は、その反応が極めて短期間で終了し、かつ、気液界面 (すなわち液体表面) 近傍における厚さ約 1μm 程度の極めて薄い溶媒層のなかで反応が進行する。このため、同現象を実験的に観測することは極めて難しい。そこで、プラズマ液体相互作用の理解を深めるためには、高度な計算シミュレーションが必要不可欠である。</p> <p>本研究では、pH が 7 に保たれたリン酸緩衝生理食塩水 (PBS) を研究対象とした。この溶液がプラズマに曝されると、溶液中の Cl<sup>+</sup>イオンから、次亜塩素酸 (HOCl) が生成される。研究の前半では、プラズマによって生成された中性 RONS が PBS 溶液内の化学反応に与える影響を、化学反応に関するグローバル (0 次元) モデルと、化学反応と輸送を同時に考慮した 1 次元 (1 D) モデルによる数値シミュレーションを用いて、解析した。この解析により、PBS 溶液中の Cl<sup>+</sup>イオンによる過酸化水素 (H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) 分解に至る 2 つの主要な反応経路が明らかになった。1 つは「次亜塩素酸イオン (ClO<sup>-</sup>) の直接分解」、もう 1 つは「一酸化塩素 (ClO) サイクル」である。一方、研究の後半では、時間依存する電荷種 (電子およびイオン) のフラックスが PBS 溶液の化学反応に与える影響について検討した。この研究では、パルス放電プラズマにおける液相化学反応の動力学を解析し、電子およびイオンが PBS 溶液に流入することで、H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub><sup>-</sup>などの安定した化学種が生成されることを示した。電子およびイオンの溶液中の反応は高速に進行するが、反応生成種は比較的安定しているため、パルス放電でも DC 的な電荷照射でも、対応する条件下では、PBS 溶液中に最終的に観測される化学種は同様に分布することを明らかにした。</p> <p>これらの研究は、60 種の液相化学種、300 を超える化学反応を、既存の反応データに基づいて解析したものであり、その結果も、可能な範囲で、実験結果と整合性が取れていることを確認している。数値シミュレーションがなければ判明しえなかつたと思われる、H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>の分解機構である、反応系「ClO サイクル」の存在も明らかにし、典型的な大気圧プラズマと PBS 溶液の相互作用機構を、世界で初めて詳細に解明したという点で、新規性も高く、極めて意義深い。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。</p>		