S. Kerzenmacher, S. Zehnle, T. Volk, D. Jansen, F. von Stetten, R. Zengerle

# 1.1 Kurzfassung

Implantierbare Glukosebrennstoffzellen auf Basis abiotischer Katalysatoren sind ein vielversprechender Ansatz zur batterieunabhängigen Energieversorgung von aktiven Implantaten. Während sich unter physiologischen Bedingungen Leistungsdichten von 3 µW/cm<sup>2</sup> erreichen lassen, ist es in der praktischen Umsetzung des Konzepts erforderlich die mit 0,2 V recht geringe Zellspannung auf die für elektronische Schaltkreise typische Betriebsspannung von 3 V zu transformieren. Bei Ausgangsleistungen im uW-Bereich zeigen kommerziell erhältliche DC-DC-Wandler jedoch nur sehr geringe Wirkungsgrade von etwa 4 %. Folglich wäre zum Betrieb eines 15 uW Herzschrittmachers eine Brennstoffzelle von mindestens 125 cm<sup>2</sup> erforderlich – zu groß um direkt auf dem Schrittmachergehäuse platziert werden können. Um die zu minimieren, wurde daher Wandlungsverluste zu eine optimierte Aufwärtswandler-Schaltung mit einem Wirkungsgrad von über 40 % aufgebaut. kontinuierlichen die den Betrieb eines 15 uW Herzschrittmachers mit einer nur 18 cm<sup>2</sup> großen Glukosebrennstoffzelle erlaubt. Der verringerte Flächenbedarf würde die zukünftige Ausführung der Brennstoffzelle als direkt auf der Oberfläche des Implantats integrierte Stromversorgung erlauben.

## 1.2 Hintergrund

**Autarke Energieversorgung für medizinische Mikroimplantate.** Während Batterien und wiederaufladbare Akkus derzeit die einzig praktisch verfügbare Energieversorgung für aktive medizinische Implantate darstellen, werden unter dem Begriff *Energy Harvesting* auch eine Reihe von alternativen Ansätzen zur autarken Energieversorgung verfolgt<sup>1,2</sup>. Ziel dieser Entwicklungen ist die Umwandlung der in der Umgebung vorhandenen chemischen, thermischen, oder kinetischen Energie in ausreichend elektrische Energie zum Betrieb eines Implantats. Somit könnte auf den bislang notwendigen chirurgischen Austausch verbrauchter Batterien bzw. den umständlichen Einsatz externer Ladevorrichtungen verzichtet werden. Die Lebensqualität der betroffenen Patienten ließe sich so entscheidend verbessern.

Implantierbare Glukosebrennstoffzellen. Zu den aktuell verfolgten Ansätzen gehören auch implantierbare Glukosebrennstoffzellen<sup>3,4</sup>, die im Vergleich zu mechanischen<sup>5,6</sup> oder thermoelektrischen<sup>7,8</sup> Energiewandlern eine besonders kontinuierliche und von äusseren Einflüssen wie Bewegung und Temperatur unabhängige Art der Elektrizitätsversorgung innerhalb des Körpers versprechen. Während mit Glukosebrennstoffzellen auf Basis enzymatischer Katalysatoren Leistungsdichten von bis zu 430 µW cm<sup>-2</sup> unter physiologischen Bedingungen erreicht werden können<sup>9</sup>, beschränkt die geringe Stabilität der verwendeten Enzyme deren Lebensdauer bislang auf wenige Wochen<sup>10</sup>. Als alternativer Ansatz wurden brereits in den 1970er Jahren abiotische Katalysatoren wie z.B. Platin und Aktivkohle in implantierbaren Glukosebrennstoffzellen verwendet<sup>11,12</sup>. Diese Systeme sind gegenüber enzymatischen Glukosebrennstoffzellen im Hinblick auf Langzeitstabilität und die für medizinische Implantate unverzichtbare Sterilisierbarkeit im Vorteil. Mit der unter physiologischen Bedingungen vergleichweise geringen Leistungsdichte<sup>3,4</sup> im Bereich 4  $\mu$ W cm<sup>-2</sup> bis 8  $\mu$ W cm<sup>-2</sup> konzentriert sich das Anwendungsfeld abiotisch katalysierter Glukosebrennstoffzellen dabei auf energieeffiziente Mikroimplantate wie z.B. Herzschrittmacher, deren Leistungsbedarf deutlich unter 100 uW liegt.

Die Funktionsweise einer abiotisch katalysierten Glukosebrennstoffzelle beruht auf der elektrochemischen Umsetzung von Glukose mit Sauerstoff an zwei räumlich getrennten Elektroden. Elektronen, die bei der Oxidation von Glukose an der Anode freigesetzt werden, fliessen über den externen Laststromkreis zur Kathode, wo Sauerstoff als terminaler Elektronenakzeptor reduziert wird. Sowohl Glukose als auch Sauerstoff diffundieren aus dem Blut oder der Gewebeflüssigkeit zu den Elektroden. Als Reaktionsprodukt der Glukoseoxidation an Platinelektroden konnte im Wesentlichen Glukonsäure nachgewiesen werden<sup>13</sup>. Daraus ergeben sich die in Abb. 1 schematisch dargestellten Elektrodenreaktionen<sup>14</sup>.



Gesamtreaktion  $C_6H_{12}O_6 + \frac{1}{2}O_2 \rightarrow C_6H_{12}O_7$ 

**Abb.1:** Prinizipielle Elektrodenraktionen einer abiotisch katalysierten Glukosebrennstoffzelle<sup>14</sup>.

Eine besondere Herausforderung für den Betrieb einer abiotisch katalysierten Glukosebrennstoffzelle stellt das gleichzeitige Vorhandensein von Glukose und Sauerstoff im Körpergewebe dar. Da die meisten verfügbaren Edelmetallkatalysatoren sowohl die Glukoseoxidation als auch die Sauerstoffreduktion katalysieren ist eine Trennung der Reaktanden erforderlich um die Ausbildung von Mischpotentialen und die damit einhergehende Leistungsverringerung zu verhindern. In dem von uns bevorzugten Konzept zur Reaktandentrennung wird dazu eine durchlässige Aktivkohle-Kathode, an der selektiv Sauerstoff reduziert wird, vor der Anode platziert<sup>15</sup> (Abb. 2). Da eindiffundierender Sauerstoff durch Umsetzung an der Kathode aus der Reaktandenmischung entfernt wird, herschen im Inneren der Zelle anoxische Bedingungen. An der Anode kann Glukose somit ohne den störenden Einfluss von Sauerstoff oxidiert werden. Der Hauptvorteil des Konzepts beruht auf der Tatsache dass ein einseitiger Reaktandenzugang ausreichend ist. Somit kann die Brennstoffzelle direkt auf der Oberfläche des zu versorgenden Implantats integriert werden.



Abb.2: A) Reaktandentrennung mittels O<sub>2</sub>-selektiver Kathode, die die Ausführung der Brennstoffzelle als Oberflächenbeschichtung erlaubt (Erklärungen im Text).B) Vorderansicht der in dieser Arbeit verwendeten Glukosebrennstoffzelle.

Notwendigkeit für einen effizienten DC-DC-Wandler. Die in unserem Labor entwickelten Aktivkohle-basierten Prototypen erreichen Leistungsdichten von bis zu 3  $\mu$ W/cm<sup>2</sup> unter physiologischen Bedingungen<sup>16</sup>. Theoretisch wäre somit die Energieversorgung eines 15  $\mu$ W Herzschrittmachers mit einer nur 5 cm<sup>2</sup> großen Glukose-

brennstoffzelle, ausgeführt als Oberflächenbeschichtung des Schrittmachergehäuses, möglich.

In der praktischen Umsetzung des Konzepts ist es jedoch erforderlich, die mit 0,2 V recht geringe Zellspannung auf die für elektronische Schaltkreise typische Betriebsspannung von 3 V zu transformieren. Bei Ausgangsleistungen im µW-Bereich lassen sich mit kommerziell erhältlichen DC-DC-Wandlern jedoch nur sehr geringe Wirkungsgrade etwa 4 % erreichen. Folglich wäre zum Betrieb des von Herzschrittmachers eine Brennstoffzelle von mindestens 125 cm<sup>2</sup> Fläche erforderlich – zu groß um direkt auf dem Schrittmachergehäuse platziert werden zu können. Um die Wandlungsverluste zu minimieren, wurde daher eine klassische Aufwärtswandler-Schaltung<sup>17</sup> auf den Betrieb mit Glukosebrennstoffzelle als Energieversorgung für einen unserer Herzschrittmacher hin optimiert. Die Verwendung eines Germanium-Transistor erlaubt hierbei das selbstständige Anlaufen des Schaltkreises ab einer Eingangsspannung von 100 mV.

## 1.3 Materialien und Methoden

**Charakterisierung des DC-DC-Wandlers.** Um die Wirkungsgrade der verschiedenen DC-DC-Wandler Schaltungen zu bestimmen wurde auf der Eingangseite der Wandler Spannungen im Bereich zwischen 100 mV und 900 mV mit einem Laborpotentiostat (G 300, Gamry Instruments, Warminster, Pennsylvania/USA) angelegt, und der resultierende Eingangsstrom gemessen. Die Ausgangsseite des DC-DC-Wandlers war mit den Stromversorgungseingängen eines Herzschrittmachers (Microny Model, St. Jude Medical, Schweden) mit entfernter Batterie verbunden. Die ordnungsgemäße Funktion des Herzschrittmachers wurde durch Visualisierung der Schrittmacherimpulse (4V bei 1 Hz) über einen 3,3 kOhm Widerstand auf einem Oszilloskop überprüft.

**Aufbau der Brennstoffzelle.** Die Brennstoffzelle wurde entsprechend der Vorder- und Rückseite eines Herzschrittmachergehäuses aus zwei parallelgeschalteteten Einzelzellen mit jeweils 9 cm<sup>2</sup> geometrischer Elektrodenfläche aufgebaut. Die Herstellung der Elektroden und der Aufbau der Einzelzellen sind an anderer Stelle<sup>16</sup> ausführlich beschrieben, und soll hier nur in aller Kürze wiedergegeben werden.

Die Elektroden wurden aus Aktivkohlepartikeln, gebunden in einer Hydrogel-Matrix aus Polyvinylalkohol und Polyacrylsäure, hergestellt. Als Stromsammler kamen direkt in die Elektroden eingebettete Platinnetzte zum Einsatz. Während die Kathode aus reiner Aktivkohle bestand, wurde

für die Anode ein Aktivkohle-geträgerter Platin-Bismuth Katalysator verwendet. Beide Elektroden wurden zusammen mit einer porösen Polyethersulfon-Membran (Supor 450, Pall, East Hills, New York/USA) mittels Silikon-Dichtungen in einen Polycarbonat-Rahmen geklemmt. Der prinzipielle Aufbau der Brennstoffzelle ist in Abb. 2 dargestellt.

**Betrieb des Gesamtsystems aus Brennstoffzelle, DC-DC-Wandler und Herzschrittmacher.** Um das Wachstum von Mikroorganismen zu unterbinden wurde die Brennstoffzelle vor Versuchsbeginn in einem mit Phosphatpuffer gefüllten aseptischen Gefäß bei 121°C für 15 min autoklaviert. Anschließend wurde die Testlösung durch Sterilfilter gegen Phosphatpuffer (PBS tabs, Invitrogen, Karlsruhe) mit 3 mM Glukose ausgetauscht. Die Lösung wurde im Inkubator auf 37°C temperiert und mit 7% Sauerstoff in Stickstoff begast. Die gewählte Glukose- als auch die Sauerstoffkonzentration entsprechen hierbei den Bedingungen im subkutanem Gewebe<sup>3</sup>. Nach erreichen einer stabilen Leerlaufspannung wurde die Brennstoffzelle entsprechend Abb. 3 mit dem Gesamtsystem aus DC-DC-Wandler, Herzschrittmacher und Oszilloskop verbunden.



Abb.3: Schematische Darstellung des verwendeten experimentellen Aufbaus: Brennstoffzelle in neutraler Glukoselösung, Schaltbild des verwendeten DC-DC-Wandlers PowerCUBE, Microny Herzschrittmacher mit entfernter Batterie, Oszilloskop zur Visualisierung der 4 V Schrittmacherpulse über einen 3,3 kOhm Widerstand.

Zellspannung und Zellstrom auf der Eingangseite des DC-DC-Wandlers sowie die entsprechenden Werte auf der Wandlerausgangseite wurden mit einem Datenerfassungssystem in Abständen von 5 Minuten aufgezeichnet.

Der Wandlerwirkungsgrad wurde als Quotient von Ausgangsleistung und Eingangsleistung berechnet.

### 1.4 Ergebnisse und Diskussion

**Wirkungsgrad des DC-DC-Wandlers.** In Tab. 1 sind die gemessen Wirkungsgrade sowie die minimalen Anlauf- und Betriebsspannungen der untersuchten DC-DC-Wandler zusammengefasst.

Tab. 1:	Betriebsparameter verschiedener DC-DC Wandler. Der Wirkungsgrad wurde
	bei 15 µW Ausgangsleistung im Betrieb zusammen mit einem Herzschrittma-
	cher ermittelt.

Тур	Wirkungsgrad bei 0,20 V Eingangsspannung	Minimale Anlauf- spannung	Minimale Betriebs- spannung
PowerCUBE (vorliegende Arbeit)	~ 35 % (~ 40 % bei 0,17 V)	0,15 V	0,15 V
OnSemi NCP1440A	~ 4 %	0,80 V	0,15 V
Texas Instru- ments TPS 61201	-/- (~ 3 % bei 0,60 V)	0,50 V	0,50 V

Während der von Texas Instruments gelieferte DC-DC Wandler bereits durch die über der Leerlauspannung der Brennstoffzelle liegende minimale Betriebspannung von 0,5 V für unsere Anwendung ungeeignet ist, könnte das OnSemi Model mit der Brennstoffzelle betrieben werden. Bei 0.2 V Eingangspannung (entsprechend der typischen Betriebsspannung der Brennstoffzelle<sup>16</sup>) liegt der Wirkungsgrad dieses Wandlers jedoch nur bei 4%, d.h. 96 % Prozent der Brennstoffzellenleistung gingen als Wandlungsverluste verloren. Legt man 3  $\mu$ W cm<sup>-2</sup> als flächenbezogene Leistungsdichte der Brennstoffzelle zu Grunde wäre somit eine Fläche von mindestens 125 cm<sup>2</sup> zum Betrieb eines 15  $\mu$ W Herzschrittmachers erforderlich.

Der in dieser Arbeit vorgestellte DC-DC-Wandler PowerCUBE weist mit 35 % einen beträchtlich höheren Wirkungsgrad auf. Entsprechend obiger Berechnung wäre damit bereits eine Brennstoffzellenfläche von 14 cm<sup>2</sup> zum Betrieb des Herzschrittmachers ausreichend.

**Betrieb des Gesamtsystems.** In Abb. 4 sind die Verläufe der Zellspannung und des Wandler-Wirkungsgrades beim kontinuierlichen Betrieb des Herzschrittmachers über einen Zeitraum von 3,5 Tagen dargestellt. Ausgehend von einer Leerlaufspannung von ca. 400 mV erreicht die Brennstoffzele über diesen Zeitraum eine stabile Lastspannung von 170 mV. Bei dieser Betriebspannung erreicht der Wirkungsgrad des DC-DC-Wandlers einen Wert von 40 %. Hervorzuheben ist, dass trotz des Puls-artigen Strombedarfs des Herzschrittmachers die Brennstoffzellenspannung stabil bleibt. Dies ist sowohl auf die Eingangskapazitäten des DC-DC-Wandlers als auch auf die Eigenkapazität der Brennstoffzelle zurückzuführen.



**Abb. 4:** Verlauf von Zellspannung und Wandlungswirkunsgrad während des kontinuierlichen Betriebs des Herzschrittmachers.

#### 1.5 Zusammenfassung und Ausblick

Mit einem Wirkungsgrad von über 40 % ermöglicht der in dieser Arbeit vorgestellte DC-DC-Wandler den kontinuierlichen Betrieb eines 15  $\mu$ W Herzschrittmachers mit einer nur 18 cm<sup>2</sup> großen Glukosebrennstoffzelle als alleiniger Energieversorgung. Diese Fläche entspricht in etwa der Außenfläche des Schrittmachergehäuses, was die zukünftige Ausführung der Brennstoffzelle als integrierte Stromversorgung auf der Oberfläche des Implantats erlauben würde. Wir konnten somit erfolgreich zeigen, dass der Betrieb eines Herzschrittmachers mittels einer abiotisch katalysierten Glukosebrennstoffzelle nicht nur theoretisch auf Basis der Leistungsdaten, sondern auch mit den in der Praxis auftretenden Wandlerverlusten möglich ist. Die zunehmende Verringerung des Leistungsbedarfs moderner

Implantatelektronik, als Beispiel sei hier ein neuartiger "Bionic Ear Processor" mit einer 25-fach verringerten Leistungsaufnahme genannt<sup>18</sup>, könnte in Zukunft die Verwendung von implantierbare Glukosebrennstoffzellen als autarke Energieversorgung auch für andere Implantate ermöglichen.

#### 1.6 Referenzen

- 1. R. A. M. Receveur et al., *J. Micromech. Microeng.*, 2007, vol. 17 (5), R50.
- 2. L. Mateu et al., *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, 2005, vol. 5837 (1), 359.
- 3. S. Kerzenmacher et al., J. Power Sources, 2008, vol. 182 (1), 1.
- 4. A. Heller, Phys. Chem. Chem. Phys., 2004, vol. 6 (2), 209.
- 5. P. Miao et al., Microsyst. Technol., 2006, vol. 12 (10-11), 1079.
- 6. S. P. Beeby et al., Meas. Sci. Technol., 2006, vol. 17 (12), R175.
- 7. Watkins, C. et al., Proc. 24th International Conference on Thermoelectronics, 2005, 265.
- 8. Venkatasubramanian, R. et al. Proc. PowerMEMS 2006, 2006, 1.
- 9. N. Mano et al., J. Amer. Chem. Soc., 2003, vol. 125 (21), 6588.
- 10. R. A. Bullen et al., Biosens. Bioelectron., 2006, vol. 21 (11), 2015.
- 11. R. F. Drake et al., *Trans. Amer. Soc. Artif. Int. Org.*, 1970, vol. 16 199.
- 12. J. R. Rao et al., Phys. Chem. Chem. Phys., 1973, vol. 77 (10/11), 787.
- 13. S. Ernst et al., Phys. Chem. Chem. Phys., 1980, vol. 84 (1), 50.
- J. R. Rao, in: Milazzo, G., Blank, M., (Eds.), *Bioelectrochemistry I:* Biological Redox Reactions, Plenum Press, New York, 1983, pp. 283-335.
- 15. J. R. Rao et al., Biomed. Eng., 1974, vol. 9 (3), 98.
- 16. S. Kerzenmacher et al., J. Power Sources, 2008, vol. 182 (1), 66.
- 17. A. Santic et al., J. Bioeng., 1977, vol. 1 (4), 357.
- 18. R. Sarpeshkar et al., IEEE Trans. Biomed. Eng., 2005, vol. 52 (4), 11.

#### Adressinformationen der Autoren

S. Kerzenmacher, Lehrstuhl für Anwendungsentwicklung, Institut für Mikrosystemtechnik - IMTEK, Universität Freiburg, Georges-Koehler-Allee 106, 79110 Freiburg, Tel.: 0761/203-7328, kerzenma@imtek.de (Autor)

S. Zehnle, Lehrstuhl für Anwendungsentwicklung, Institut für Mikrosystemtechnik - IMTEK, Universität Freiburg, Georges-Koehler-Allee 106, 79110 Freiburg, 0761/203-7328, arne.kloke@imtek.uni-freiburg.de (Co-Autor)

T. Volk, Hochschule für Technik, Wirtschaft und Medien, Badstrasse 24, 77652 Offenburg, 0781/205-0, t.volk@hs-offenburg.de (Co-Autor)

D. Jansen, Hochschule für Technik, Wirtschaft und Medien, Badstrasse 24, 77652 Offenburg, 0781/205-0, d.jansen@hs-offenburg.de (Co-Autor)

F. von Stetten, Lehrstuhl für Anwendungsentwicklung, Institut für Mikrosystemtechnik - IMTEK, Universität Freiburg, Georges-Koehler-Allee 106, 79110 Freiburg, 0761/203-7393, vstetten@imtek.de (Co-Autor)

R. Zengerle, Lehrstuhl für Anwendungsentwicklung, Institut für Mikrosystemtechnik - IMTEK, Universität Freiburg, Georges-Koehler-Allee 106, 79110 Freiburg, 0761/203-7476, zengerle@imtek.de (Co-Autor)