

令和 4 年 5 月 23 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19H03079

研究課題名（和文）マイクロ流体制御デバイスを用いた超長寿命小型ルーメンpHセンサの開発

研究課題名（英文）Development of an Ultra-Long-Life Miniature Rumen pH Sensor Using a Microfluidic Control Device

研究代表者

伊藤 寿浩 (Itoh, Toshihiro)

東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・教授

研究者番号：80262111

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,300,000円

研究成果の概要（和文）：超長寿命小型ルーメンpHセンサを実現するため、低消費電力で駆動されるマイクロバルブを備えた開閉型液絡と、超長寿命Ag/AgCl電極とを開発するとともに、それらを集積した間欠動作参照電極を開発した。また、超長寿命pHセンサ用の感圧接着剤を用いた平面全固体ガラス電極構造を提案し、このガラス電極を搭載した無線小型ルーメンpHセンサの試作を行って、フィステル形成牛へ投入し無線通信を行なった。また、センサ用の自立電源としてのルーメン細菌叢発電を無線小型ルーメンpHセンサに搭載するための電極・実装構造の検討を行なった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

バルブ液絡型参照電極という新たなコンセプトによるpHセンサの長寿命化技術は、他の流体デバイスなどにも応用可能な技術であり、マイクロマシン分野での学術的な意義は大きい。またpHセンサの長寿命化は、牛ルーメンモニタリングのみならず、環境モニタリングにも資する成果であり、社会的意義も大きい。

研究成果の概要（英文）：In order to realize an ultra-long-life miniature rumen pH sensor, we realized an intermittently operating reference electrode by introducing a low power SMA valve-actuator into a liquid junction and developing a new Ag/AgCl electrode device that can redeposit AgCl. We also proposed a planar all-solid-state glass electrode structure with pressure-sensitive adhesive for ultra-long-life pH sensors, and fabricated a wireless rumen pH sensor with the prototyped glass electrode, which was fed into a fistula-forming cow for wireless communication demonstration. In addition, we investigated the electrode and mounting structure of a rumen bacterial flora power generator to introduce it into the wireless rumen pH sensor as a self-power generator.

研究分野：マイクロシステム実装工学

キーワード：リモートセンシング コンピュータネットワーク・ICT 精密畜産

### 1. 研究開始当初の背景

畜産の生産性向上を図るための技術である濃厚飼料多給技術は、牛に適用した場合には、肉用牛の成長を早め、乳牛の乳量を大幅に高める。しかし、濃厚飼料を過剰給与すると牛の第一胃(ルーメン)内環境の恒常性に破綻(異常発酵)をきたすため、ルーメンアシドーシスなどの消化器病を中心とした生産病と呼ばれる生産過剰に伴う疾病の増加を招き、我が国では消化器病による牛の死産頭数は年間4万頭以上に上る。牛のルーメン液の pH は、健康な牛であれば6~7に保たれているが、ルーメンアシドーシスが起ると約5.5まで下がる。これを未然に防ぐためには、例えば、ルーメン液の pH をモニタリングし、その変化に応じて薬を投与するなどの処置を施せばよい。そこで、経口型のルーメン pH センサの開発が内外で行われてきたが、寿命が最大3ヶ月程度と短いこと、センサのサイズが大きく、牛への負担が大きいことが問題であり、超小型超長寿命 pH センサシステムの開発が求められている。サイズについては、牛への負担を考慮し、従来のパーネット並のサイズである直径20 mm、長さ70 mm程度以下にする必要があり、体内留置型で交換ができないため飼養期間、すなわち2年以上連続動作する必要がある。特に pH センサの参照電極である Ag/AgCl 電極では、KCl 参照液の流出と Ag/AgCl 電極の消耗により、電極すなわち pH センサの小型化と長寿命化が困難となっている。

### 2. 研究の目的

pH センサの低消費電力間欠動作を可能にするマイクロ流体制御デバイスを開発して、2年以上の長期間連続動作する経口投入可能な小型無線ルーメン pH センサを実現する。具体的には、低消費電力で駆動されるマイクロバルブを備えた開閉型液絡と、超長寿命 Ag/AgCl 電極とを開発するとともに、それらを集積したマイクロ流体デバイス型の間欠動作参照電極を開発する。そして、この集積マイクロ参照電極を用いて、pH センサと無線通信の間欠動作制御によって2年以上の連続動作が可能な、牛への負担無しで経口投入できるサイズ(直径20 mm x 長さ70 mm程度以下)の無線ルーメン pH センサシステムを開発する。さらに、生体適合性材料を用いてパッケージされたセンサを試作し、実験牛を用いた実証実験により、その適用性を検証する。

### 3. 研究の方法

(1) 低消費電力で駆動されるマイクロバルブを備えた開閉型液絡と、超長寿命 Ag/AgCl 電極とを開発するとともに、それらを集積した間欠動作参照電極を開発する。

(2) 指示電極の長期安定性やセンサ用の長寿命電源などを検討するとともに、無線小型ルーメン pH センサを試作して、実験牛を用いた実証実験を実施する。

### 4. 研究成果

(1) 低消費電力で駆動されるマイクロバルブを備えた開閉型液絡と、超長寿命 Ag/AgCl 電極とを開発するとともに、それらを集積した間欠動作参照電極を開発した。また牛ルーメン液を用いて、試作した間欠動作参照電極の基本動作検証を行った。

マイクロバルブを備えた開閉型液絡の開発では、内径0.5 mmのシリコンチューブ液絡の開閉が可能な形状記憶合金(SMA)を用いたバルブを開発した。バルブは、ノーマリークローズ型で、非動作時にはシリコンチューブ液絡はSMA超弾性ワイヤによって押圧されており、動作時に通電によりSMAアクチュエータワイヤが超弾性ワイヤを引張することで液絡が開く構造とした。これにより、応答時間0.1秒以下、pH値換算誤差0.1以下の液絡バルブを実現した。また、このSMAアクチュエータの駆動電力の低消費電力化のため、パルス駆動制御を導入し、30 mW程度での駆動を可能とした。

超長寿命 Ag/AgCl 電極の開発では、水素圧援用バルブ液絡型参照電極構造を提案・試作した。この構造では、KCl 参照液(電解液)タンクに、Ag/AgCl 電極とともに Pt 電極が浸漬されており、電極間に電圧を印加すると、Ag/AgCl 電極上では AgCl が析出し、Pt 電極上では水素が発生する。一定期間ごとに電圧を印加することにより、溶出消耗した AgCl を補えるため、長期安定動作する Ag/AgCl 電極を実現できる。また、発生水素による圧力で液絡中の気泡を除去

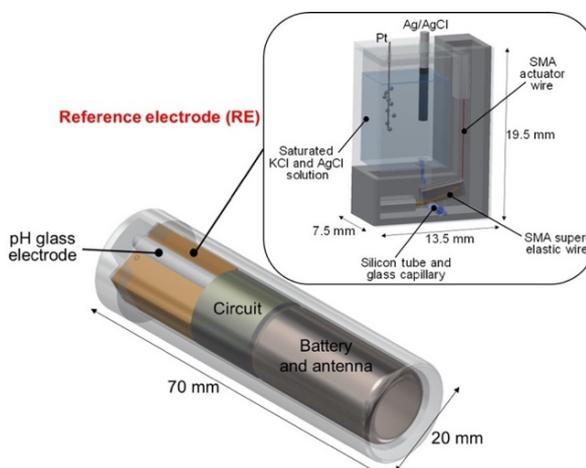


図1 間欠動作動作参照電極

できる液絡クリーニング効果を実証することができた。

これらを用いて、13.5 x 7 x 19.5 mm<sup>3</sup>の間欠動作参照電極（図1）を試作し、フィステル形成牛より採取したルーメン液で動作を検証した結果、市販 pH センサによる計測値との差が 0.1 以下の安定した pH 計測が行えることを確認することができた。

(2) 超長寿命小型ルーメン pH センサを実現するため、ルーメン内で pH センサの要素電極に生じる現象について調査した。そして、pH センサの長寿命化のための平面全固体ガラス電極構造の提案を行うとともに、高感度化および実装構造の最適化検討を行った。またこのガラス電極を搭載した無線小型ルーメン pH センサを試作して、フィステル形成牛に投入して無線通信性能の評価を行なった。

フィステル形成牛のルーメンに pH センサのガラス電極と参照電極をそれぞれ 4 か月間留置した結果、いずれの電極もルーメンの日内 pH 変動 1 を検出できない程度に電極感度が変化することがわかった。また、ガラス電極表面の濁りを取り除くと、ルーメンに投入前の感度の 95% 以上に感度が回復するため、適切なガラス電極表面の汚染防止コーティングによってガラス電極性能を維持できる可能性があることが判明した。さらに、参照電極の電位のずれは、内部液量約 1 mL に対して塩化カリウム結晶を 240% (w/w) 加えることで 2 年間抑制可能であると見積もることができた。

pH センサの長寿命化のためのガラス電極構造として、バックコンタクトに導電性銅箔テープを用いた平面全固体ガラス電極を提案し、試作した結果、従来構造の 90% 以上の感度が得られることがわかった。平面全固体ガラス電極について、バックコンタクトから端子への電極接続プロセスの低温化を検討したが、機械的な接触のみで行うと、感度が低下するため、常温接合など化学的接合を行う必要があることがわかった。また、ガラス電極の接液面にディンプルを形成すると、いずれも形成しない場合より感度が向上し、最大で 3 倍になったことが判明し、ガラス表面の形状をわずかに変化させるだけで高い感度が得られる可能性が示された。

この平面全固体型ガラス電極を搭載した直径 22 mm x 長さ 70 mm の無線ルーメン pH センサを試作し（図2）、フィステル形成牛への投入実験を実施した結果、平面全固体ガラス電極用の実装構造が有効であること、ルーメンからのセンシングデータの無線通信による収集が可能であることを示すことができた。

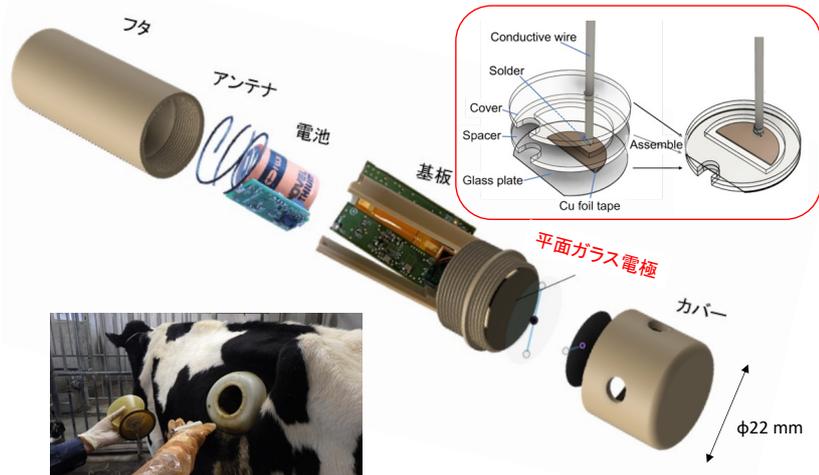
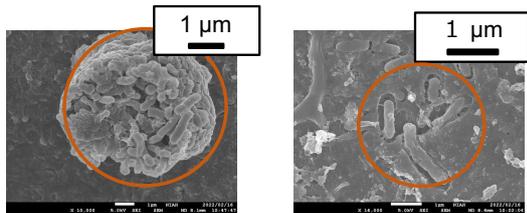
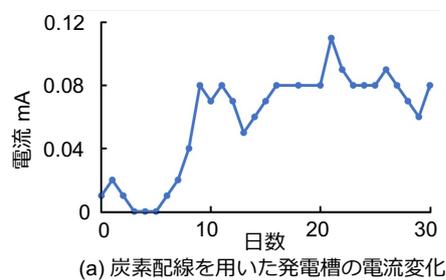


図2 平面全固体ガラス電極を搭載した無線ルーメン pH センサ

(3) センサ用の自立電源としてのルーメン細菌叢発電の検討、特に無線小型ルーメン pH センサに搭載するための電極・実装構造の検討を行なった。

ルーメン細菌叢発電に関して基本検討を行い、1 L のルーメン内容物を入れた発電槽が電極挿入後 2 週間後には 0.5 V- 数 mA 程度の発電性能を示し、1 ヶ月以上性能を維持できることを明らかにした。また、炭素配線を検討した結果、腐食しない配線であることが示され、発電性能については、配線に細菌が定着することで電圧・電流値が上昇することが確認でき、電極と同様に事前に細菌を定着させることで実用レベルまで性能を改善できる可能性があることがわかった（図3）。



(b) アノード側炭素配線表面 (c) カソード側炭素配線表面

図3 炭素配線を用いたルーメン細菌叢発電

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 宗田吉広、澤田浩、岡田浩尚、伊藤寿浩、山中典子、新井鐘蔵	4. 巻 74
2. 論文標題 牛のルーメンセンサとルーメン内細菌叢に関する最近の話題と研究	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 日本獣医師会雑誌	6. 最初と最後の頁 121-126
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.12935/jvma.74.121	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Higuchi Shogo, Okada Hironao, Takamatsu Seiichi, Itoh Toshihiro	4. 巻 20
2. 論文標題 Valve-Actuator-Integrated Reference Electrode for an Ultra-Long-Life Rumen pH Sensor	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Sensors	6. 最初と最後の頁 1249 ~ 1249
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/s20051249	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 下段千尋、岡田浩尚、宗田吉広、澤田浩、高松誠一、伊藤寿浩
2. 発表標題 畜産牛のルーメン内におけるpHセンサ電極の性質変化の検証
3. 学会等名 2021年度精密工学会秋季大会学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Chihiro Shimodan, Hironao Okada, Seiichi Takamatsu, Toshihiro Itoh
2. 発表標題 Study of the Back Contact Flat All-Solid-State Glass Electrodes
3. 学会等名 The 12th Japan-China-Korea Joint Conference on MEMS/NEMS（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 矢代雄介、宗田吉広、澤田浩、新井鐘蔵、芝原友幸、伊藤寿浩
2. 発表標題 ルーメン細菌発電機能を備えたルーメンセンサの検討
3. 学会等名 2022年度精密工学会春季大会学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 下段千尋、岡田浩尚、伊藤寿浩
2. 発表標題 ガラス膜表面への金属膜形成を用いたpHセンサ平面指示電極の構造検討
3. 学会等名 2021精密工学会春季大会学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宗田吉広、澤田浩、下段千尋、岡田浩尚、伊藤寿浩、新井鐘蔵
2. 発表標題 ルーメン内容物（細菌叢）発電（RuMie-E-E）の基盤技術の確立
3. 学会等名 第164回日本獣医学会学術集会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宗田吉広、澤田浩、斉藤ゆり子、新開浩樹、尾澤知美、山中典子、新井鐘蔵
2. 発表標題 健康RF牛におけるルーメン内細菌叢の解析 フィステル採取及び経口採取による細菌叢の相違及びPB投与による影響
3. 学会等名 第128回日本畜産学会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 陽極及び陰極にルーメン内微生物（細菌叢）を定着させた竹炭電極を用いた発電方法及び 発電装置	発明者 宗田吉広、澤田浩、 新井鐘蔵、芝原友幸	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2021-140074	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

#### 6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	新井 鐘蔵  (Arai Shozo)  (20414732)	国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構・動物衛生研究部門・グループ長   (82111)	
研究 分担者	宗田 吉広  (Muneta Yoshihiro)  (20391451)	国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構・動物衛生研究部門・上級研究員   (82111)	

#### 7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

#### 8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------