

論文の内容の要旨

論文題目 有機トランジスタを用いた
大面積生体センシング

氏名 栗原 一徳

研究背景・目的

近年有機エレクトロニクスはOLED照明[1]やディスプレイ[2]などへの応用が盛んにおこなわれている。特に生体電気信号センシングの分野では従来の硬いシリコンに変わる低侵襲性の電極材料としてフレキシブル電極アレイの研究が始まっており[3]、ここにフレキシビリティを持った有機エレクトロニクスの導入されていくと無機では実現できないような新規医療デバイスの実現が可能になると考えられる。このような研究が発展することで今後、障害を持った患者に対する義手のブレインマシーンインターフェース[4]等、新たな医療への可能性を広げることにつながると考えられる。

現状の生体計測はシリコンによる高侵襲な計測が主流であり、加えて測定用のケーブルが皮膚を貫通しなければならないなどの安全性や利便性での課題が残っている。本研究では有機トランジスタを利用した大面積ながらも埋め込み可能であり、かつフレキシブルな生体電気信号センシングデバイスの作製を目的とする。そのために以下の3つの課題の解決を行った。

①インプラント型デバイスによる感染症リスクの低減

現在の生体計測では電極だけを生体に埋め込み、長いケーブルを皮膚を通過させて外部にある機器に接続することで計測を行うことが主流である。しかし、このような計測では皮膚に空いた術創からの感染症の危険があり、数か月といった長期に渡る計測や利用は困難であった。そこで全体を生体内にインプラントできる生体計測用デバイスの作製が重要である。本研究ではインプラントデバイスを実現させるために不可欠な滅菌処理ができる有機トランジスタの作製を第一の目的としている。具体的には**乾熱滅菌に用いられる160℃以上の耐熱性を持つ有機トランジスタの作製が目標**である。

②低ヤング率バッファーによる炎症の抑制

現在医療デバイスに利用されている素材の多くは生体適合性ではあるが、非常に硬いものが多い。シリコンなどの無機材料はもとより、例えばフレキシブルと言われている有機材料でも一般的なポリイミドフィルムで数 GPaであり、PDMSでも1 MPa程度の硬

さを有している[5]。数十～数百 kPaといった柔らかい生体よりも硬いこれらの材料を使用した場合、そこへ応力集中が起きるため炎症が起きやすくなる。そこで本研究では数百kPaの非常に低ヤング率な新規材料である環動ゲル[6]を生体とデバイスのバッファ層として利用することで炎症が起りにくい長期利用に適したデバイス構造を創出することを目的とする。具体的にはまだ力学的特徴が調べられてない光架橋性の環動ゲルのヤング率を伸長試験により求め、100 kPa以下になるように最適化をおこなう。

③有機増幅回路によるS/N比の向上

最後に生体信号のセンシングにおける重要なファクターである信号雑音比 (S/N比) の改善を目標とする。現状では電極から長いケーブルを通したのちに増幅回路によって信号の増幅を行っている。これを有機のフレキシブル回路を利用することで電極近傍に埋め込むことができるようになり、雑音が大きくなる前に信号を増幅することができるようになる。

実験結果

①インプラント型デバイスによる感染症リスクの低減

有機トランジスタは主に加熱蒸着と溶液プロセスにより作製した(図1)。以下で各プロセスを説明する。まず基板にゲート電極としてアルミニウムを30nm蒸着した。その後このアルミ電極を酸素プラズマ処理することで表面に4nm程度の酸化アルミニウム層を作製した。さらに基板をイソプロピルアルコールに溶解させたn-オクタデシルホスホン酸に16時間浸漬することで厚み2nmの極薄の絶縁膜を作製した。その上に厚さ30nmのジナフトチエノチオフェン (DNNT) を真空蒸着により製膜し有機半導体層とした。最後に金をソース/ドレイン電極として50nm蒸着した。以上により作製した有機トランジスタの上に耐熱性と防水性の向上の為にポリクロロパラキシリレン高分子(以下パリレン)と金によるハイブリット封止膜を製膜した。それぞれの厚みはトランジスタ側から向かってパリレン300nm/金200nm/パリレン1 μ mである。このデバイスに対して窒素中で加熱実験を行った。加熱手順は試料を30 $^{\circ}$ C(室温)から40 $^{\circ}$ Cへ昇温し30分間温度を一定に保った後再び30 $^{\circ}$ Cに戻してトランジスタの伝達特性を測定した。加熱中の温度は40 $^{\circ}$ Cの実験後に50 $^{\circ}$ C、次に60 $^{\circ}$ C…と

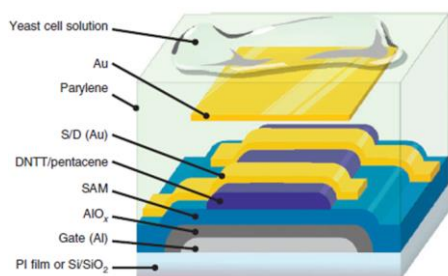


図1 耐熱性有機トランジスタ構造

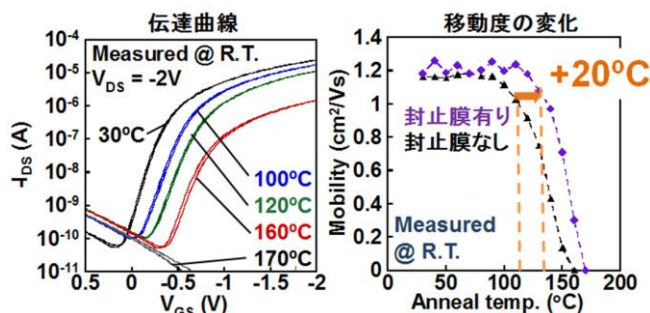


図2 加熱後特性(左)と移動度の変化(右)

10℃ずつ上昇させていき170℃まで行った。その結果を図2に示す。封止膜のないものは120℃付近で移動度の低下が見られたが、ハイブリット封止膜のあるトランジスタは160℃の加熱後にもトランジスタ特性を示しおよそ20℃の耐熱性の改善がみられた。この有機トランジスタに対し150℃20秒の乾熱処理や100℃30分の煮沸を含む殺菌・滅菌処理を行ったところトランジスタ特性が変化しないことを確認した。

②低ヤング率バッファによる炎症の抑制

次にゲルの力学強度を見る為に伸長試験を行った。ゲルにはアダマンタン基でキャップをしたポリロタキサンを利用した。3gの水に300mLのポリロタキサンを溶解させてUVにより架橋を行った。この時光架橋開始剤の濃度を0.02~2.67wt%まで変化させて架橋を行った。このゲル試料を伸長試験機にかけて1mm/minの速度で上下方向に伸長させた。そして、その時の応力と伸長率のグラフからヤング率を求めた。結果として0.1~1wt%程度に架橋開始剤の濃度を調整したときにヤング率が100kPa以下で丈夫なゲル試料を得ることができた。特に0.67wt%では伸長率も100%まで達したものが得られた(図3)。

③有機増幅回路によるS/N比の向上

最後に雑音比の改善の為に有機増幅回路の作製と、クロストークを低減する回路構成を作製した。有機増幅回路には安定性の高いp型回路だけを用いた擬CMOSインバータ回路[7]を用いた。このインバータを利用して増幅回路を構成しゲルをキャパシタに用いた入力端子にファンクションジェネレータから交流電圧を印可してそのときの出力を確認した。この時有機増幅回路は1kHzまで増幅効果を発揮しゲインは5 Hzで最大の24を示した(図4)。生体信号は主に1kHz以下の信号成分で構成されているため周波数帯域としては十分な効果があると考えられる。今後は増幅利得の改善が課題となる。

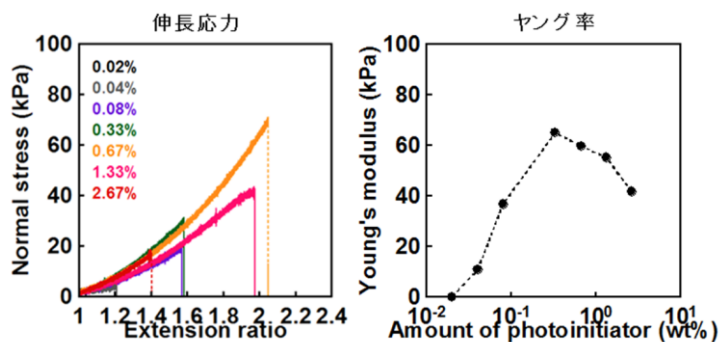
さらに、GND配線を8x8の金電極マトリックスの電極間に配置しクロストークが低減できることを確認した。実験では一点に入力した電位が周りの電極でどの程度観測されるかを調べた。この時の入力電圧は1kHzで電圧は100mVとした。その結果図5に示すようにGNDの静電遮蔽効果により近傍点でも入力点の14%という値になり、GNDがない構造での56%に比べて電位の分布を大きく抑えることができた。この結果はシミュレーションの結果とほぼ一致した。測定デバイスではこの格子状のGND構造と前述の有機増幅回路を用いることで従来よりもS/N比の改善が期待できると考えられる。

結論

封止膜構造の利用により150℃以上の高温でも有機トランジスタを駆動させることに成功し、世界で始めて有機トランジスタが滅菌処理に耐えることを実証した。また生体との炎症を抑える為に、環動ゲルを利用した生体電気信号計測用のバッファ構造を創出した。生体信号取得用の有機増幅回路では擬CMOSインバータを利用することで非常に安定な増

幅回路の作製を行い信号増幅ができることを示した。さらにマトリックス状にしたときの周囲の電極との信号混線を低減させるGND格子構造の導入も行い、静電遮蔽効果を十分発揮することを確認した。

以上の結果から本研究により大面積なフレキシブル有機生体センシングの基礎的な構造を創出し今後の有機エレクトロニクスへの大きな貢献ができたと考えられる。



←図3 伸長度と伸長応力のグラフ(左)と光架橋開始剤濃度によるヤング率の変化(右)

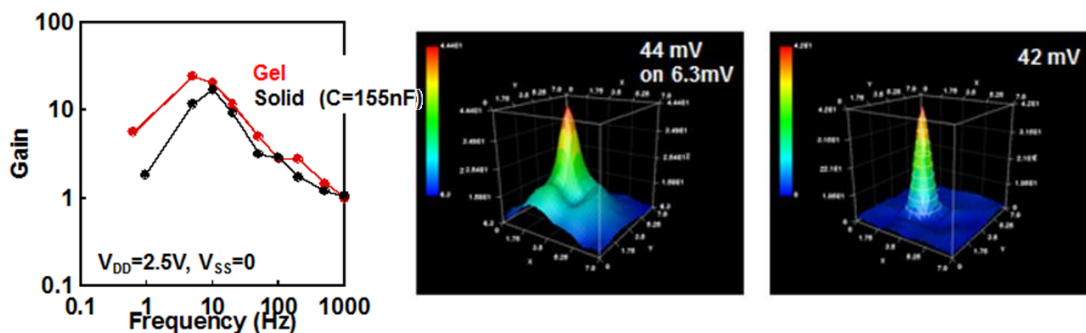


図4 増幅率の周波数依存性

図5 GND構造なし(左)とあり(右)での電位測定

参考文献

- [1] F. So, J. Kido, and P. Burrows, *MRS BULLETIN* **33**,663-669 (2008).
- [2] T. Sasaoka, M. Sekiya, A. Yumoto, J. Yamada, T. Hirano, Y. Iwase, T. Yamada, T. Ishibashi, T. Mori, M. Asano, S. Tamura and T. Urabe, *SID Symposium Digest of Technical Papers* **32**, 384–387 (2001).
- [3] D.H. Kim, J. Viventi, J. J. Amsden, J. Xiao, L. Vigeland, Y.-S. Kim, J. A. Blanco, B. Panilaitis, E. S. Frechette, D. Contreras, D. L. Kaplan, F. G. Omenetto, Y. Huang, K.-C. Hwang, M. R. Zakin, B. Litt & J. A. Rogers, *Nature Materials* **18**, 2745 (2010).
- [4] M. D. Serruya¹, N. G. Hatsopoulos, L. Paninski, M. R. Fellows & J. P. Donoghue, *Nature* **416**, 141-142 (2002).
- [5] T. Ware, D. Simona, R. L. Rennaker & W. Voitad, *Polymer Reviews* **53**, 108–129 (2013).
- [6] K. Ito, *Polymer Journal advance online publication*, 1-4 (2011).
- [7] K. Fukuda, T. Sekitani, T. Yokota, K. Kuribara, T.-C. Huang, T. Sakurai, U. Zschieschang, H. Klauk, M. Ikeda, H. Kuwabara, T. Yamamoto, K. Takimiya, K.-T. Cheng, and T. Someya, *IEEE ELECTRON DEVICE LETTERS* **32**, 1448 (2011).