

博士論文（要約）

有機トランジスタを用いた
大面積生体センシング

栗原 一徳

背景と目的

近年フレキシブルエレクトロニクスに関する研究は盛んに行われており、特に注目を集めている分野が医療応用である。フレキシブル基板を利用した医療デバイスとしては、2014年に米 Google 社が発表した血糖値管理用スマートコンタクトレンズが記憶に新しい。このような人体に接した医療器具は今後益々研究され、将来的にはブレインマシーンインターフェースなどの電動義肢や、埋め込み型による長期間の脳波測定および診断などに利用されていくことが期待されている。特に有機材料は、柔軟かつ軽量であり埋め込み型デバイスへの利用に有利である。しかしながら、いまだ埋め込み型生体電気信号計測には感染症のリスクやクロストークの低減などの課題が存在している。

本研究では将来の埋め込み型生体電気信号計測をめざし、生体埋め込みが可能な大面積有機センシングアレイの作製を目的としている。具体的には

- ①医療デバイスとして滅菌可能な有機トランジスタの実現
- ②長期測定での炎症作用の軽減化に加えて
- ③測定精度向上のため信号雑音比の改善

の3つを行っていく。

インプラント可能な有機トランジスタ

現在の長期脳波測定では、脳に貼り付けたケーブルから外部の計測機器へ長いケーブルを経由する必要がある。このような構造は使用者の行動の自由を制限するだけでなく、ケーブル取り出し口からの感染症の危険も含むものである。そこで、エレクトロニクスの一部を体内埋め込み型とすることで、上記のデメリットを低減できると考えられる。埋め込み型デバイスの実現には、デバイスへの滅菌処理が必要不可欠であるが、これまで滅菌条件に耐える有機デバイスの報告はなかった。そこで、比較的低エネルギーの反応である加熱滅菌処理に耐えうる有機トランジスタの作製を行った。

加熱滅菌可能な有機トランジスタを実現するためには、耐熱性と耐水性の両立が必要である。それは多くの加熱滅菌条件で高温、または加水分解反応を利用しているためである。本研究で使用した DNNTT 有機トランジスタは、約 100°C の加熱後から移動度の低下が見られ 150°C の加熱後ではトランジスタ特性が消失した。100°C は X 線回折実験調べた DNNTT 半導体の格子定数変化や、原子間力顕微鏡による DNNTT 薄膜の表面形状変化が現れる温度と非常に近い値であった。そこで、パリレン高分子の封止膜をこの有機半導体上に製膜することで表面形状の変化を抑制したところ耐熱温度が約 20°C 向上し、150°C 20 秒の加熱殺菌後でも移動度 $0.3 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ でのトランジスタ駆動が確認された。さらに封止膜層をパリレンと不活性金属の Au ハイブリッド封止膜にすることで耐水性の改善も行うことで、30 分間の煮沸を 3 度行う間欠滅菌後でも移動度 $0.5 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ で駆動することを確認した。

一方で、埋め込み型デバイスの実現に重要な点に駆動電圧がある。駆動電圧の低減は使用者の安全性の上昇とともに、消費電力の低下ひいては電源寿命を延ばし埋め込みデバイスの安定運用に欠かせない要素である。本研究では、有機トランジスタのゲート絶縁膜に

酸化アルミニウムと自己組織化単分子膜によるハイブリット絶縁膜を用いて 2 V の低電圧駆動を実現している。自己組織化単分子膜の構造は 2 nm 厚と極薄なため、通常では観察が困難である。本研究ではプリンストン大学の協力の下、X 線吸収端近傍吸収微細構造解析により自己組織化単分子膜の構造の観察を行った。その結果、およそ 200°C まで安定した構造を保持し、分子の配向度を示す二色偏光値（値域: -1~1）は初期値 0.6 から加熱後も 0.5 以上と高い値を示した。このように高い熱安定性をもつ材料をゲート絶縁膜に利用したことも、滅菌可能な有機トランジスタの実現に大きく寄与していると考えられる。

以上により、世界で初めて 2 V 駆動の低電圧駆動かつ滅菌処理条件に耐えられる有機トランジスタを実現することができた。

生体親和性ゲル

長期埋め込みデバイスの課題の一つは、デバイスと生体の接触による炎症作用である。そのため長期測定では信号強度の低下や、測定部位のズレなどが起きてしまう。この炎症はデバイスによる生化学的、力学的な刺激が原因である。そこでデバイスと生体の間に抗炎症性のバッファ層を導入することでこの炎症作用を大きく抑制できると考えられる。生化学的・力学的刺激は現在既に行われているようにパリレンやポリイミドなどの生体適合性の材料でコーティングすることで解決できる。一方、応力集中による生体の炎症を抑えるためには、生体と同程度のヤング率と伸縮性を持った材料を利用する方法が考えられる。そこで、本研究では生体適合性で低ヤング率を実現できる新規材料の環動ゲルに着目し、このゲルでのバッファ層作製を目指した。理想的なバッファ層となるためにはセンシング対象となる脳と同程度の低ヤング率を持つことが必要となる。具体的には 100kPa 以下のヤング率を目指す。

架橋開始剤量を変化させてヤング率の最適化を行った。その結果、架橋開始剤が 0.1-1wt% 程度の濃度で柔らかく、丈夫な試料が得られた。このときヤング率は 40-70 kPa であり、伸長率は 60-100% という生体組織と比較して十分高い伸長度が得られた。

さらに生体電気信号取得の為にバッファ層に伝導性があることが必須である。ゲルの導電性は内部の電解質の濃度やポリマーの分極の有無などにより影響を受ける。実際に含水率が 50% 程度と低いゲルでは導電性は 1 ケタ以上低下してしまう。

環動ゲルを 20 Hz-1 MHz の範囲で交流インピーダンス測定した結果、環動ゲルには分極などによる誘電分散は見られず、体積伝導率が確認できる 100 kHz 以上の高周波では 9 mS/cm と生理食塩水の 16 mS/cm に比較しても比較的良好な伝導率が得られた。これは、本研究で用いた環動ゲルは架橋構造の中に多くが水分を含むことができることで、高い含水率を実現することができたためだと考えられる。

以上から環動ゲルを用いることで、電気計測を阻害せずに低ヤング率な抗炎症バッファ層を作製できることが示された。

大面積センシングマトリックス

大面積センシングマトリックスではクロストークの低減が課題である。現在主流な測定では多くとも 256 チャンネル程度の電極の使用にとどまっている。今後研究が進み多チャンネル化の要求が生まれた場合、配線での信号送信中でのクロストークやノイズの混入により信号雑音比が低下する課題が予想される。これは埋め込み型に関わらず現在のケーブルを使った生体計測でも大きな課題である。そこで本研究の終わりに集積化時のノイズの低減を目指した。ノイズの主な原因は前述の配線間のクロストークである。またそれに加えて本研究ではバッファ層を導入したことによるマルチ電極間でのクロストークも考えられる。

まず後者のクロストークについて述べる。抗炎症に効果のあるバッファ構造であるが、導電性のゲル材料のみでは生体から電極までの間に電荷が拡散してしまい、隣接の電極でも信号を取得してしまう影響が考えられる。そこでバッファ層を導入しても電氣的な計測に影響が出ないよう、バッファ層に各電極を素子分離するような絶縁ゲルによるバンク構造を導入することを考えた。このバンク構造により柔らかさを保ちながらも電極間クロストークを低減することができると考えられる。

ゲルバンク構造の導入では UV パターニングを利用することで良好なバンク構造を得ることができた。7x7 mm²の電極セルのアレイに対して縦横に電極を分離するように 1 mm 幅のシリコンによるバンクを作製した。その後セルの開口部に前述の環動ゲルを満たしバッファ層を作製した。バンクを持った電極マトリックスとバンクを持たない環動ゲルバッファ層のみの電極マトリックスを用いて、1 点から 100 mV のパルス信号を入力したときの各電極間での電圧分布を確認した。結果としてバンク構造を持つ電極マトリックスでは電荷の分散が低減できるために 45 mV の信号強度が得られた。これはバンクなしの構造で得られた 23 mV と比較して 96%の信号強度改善であった。

一方で配線間でのクロストークに関しては配線への送信前に信号取得時にすぐに増幅回路で信号を増幅することで信号雑音比の改善ができると考えられる。そこで本研究では有機増幅回路を作製して信号増幅実験を行った。実験では 1 mV の正弦波を入力し、その増幅率を見た。結果として、9 Hz において最大 Gain 480 の電圧利得を得ることができた。また ECG のメインである 100 Hz までの範囲で見ても Gain 8.7 以上の値を示した。また増幅効果は 1 kHz まで確認できた。これは細胞の活動電位におけるメインの周波数程度である。

本研究では①滅菌可能、②生体親和性、③信号雑音比の向上の 3 項目に関して、有機エレクトロニクスを中心にして解決し、BMI や長期バイタル診断などを目指した医療用埋め込み型有機デバイス構造を創出することができた。