

有機デバイスの生体・医療応用

横田知之*

1. はじめに

半導体を用いたイメージング技術の進歩とともに、医療診断用の機器は発展を遂げてきた。X線や超音波などの電磁波を用いたイメージングは、生体内の情報を非侵襲に取得することが可能である。実際、これらの電磁波を利用したイメージング技術である、磁気共鳴画像診断(MRI)やコンピュータ断層撮影(CT)などが、病気の診断などにおいて必要不可欠な技術となっている。

これらの生体イメージングの重要な応用先として、大きく2つに分類することができる。1つ目は、X線やCTなどを用いた体内の静的な生体情報を撮像するイメージング応用。もう1つは、脈拍や血中酸素濃度、血圧といった時間と共にダイナミックに変化する動的な生体情報を撮像するイメージング応用である。静的な生体情報のイメージングでは、ダイナミックな変化が少ないために、イメージングする速度は求められない。一方で、多点かつ細かなイメージの撮像を行う必要があるために、高解像度や高感度といった特性がデバイスに求められる。その一方、動的な生体情報のイメージングでは、1点もしくは数点での測定が求められること多く、高解像度を必要としない。しかし、血流のように常に変化をしているものを撮像するため、高速での撮像がデバイスに求められる。

近年、目覚ましい半導体デバイスの小型・軽量化が進むことで、スマートウォッチを代表としたウェアラブルデバイスに集積可能なイメージング素子の開発が行われてきている。既に製品化されている、スマートウォッチやリストバンド型のデバイスには、小型のLED素子と光センサが実装されており、光センサが皮膚に直接接触することで、脈拍や血圧、血中酸素濃度といった生体情報を、連続的に長期間モニタリ

ングすることが可能となっている。また、ウェアラブルデバイスの装着負荷をさらに減らすために、センサ部分のフレキシブル化や小型化の研究も進んでいる。従来の固いセンサと比較して、フレキシブルなセンサは、材料自身がやわらかいために、生体曲面に追従するように貼り付けることができる。その結果、センサと肌の密着性が向上し、脈拍や血中酸素濃度といった生体信号を、日常生活の中で精度よく測定することが可能になる。

本稿では、我々が近年開発したフレキシブル有機イメージャー技術について紹介をする⁽¹⁾。我々の開発した有機イメージャーは、これまでのフレキシブルイメージャーとは異なり、高解像度と高速撮像を同時に実現することに成功した。その結果、指紋や静脈といった静的な生体情報と、脈波などの動的な生体情報を1枚のセンサで同時に計測することが可能である。

2. フレキシブル有機イメージャー

我々の開発したフレキシブル有機イメージャーのデバイス構造図とデバイス写真を図1に示す。フレキシブル有機イメージャーは、近赤外光に高感度を有する有機フォトダイオードを光センサに、低温ポリシリコン(LTPS)薄膜トランジスタをセル選択のためのバックプレーンに用いている(図1)。フレキシブル有機イメージャーは、実効的な受光総面積が $12.6 \times 12.8 \text{ mm}^2$ であり、セルピッチが $50 \mu\text{m}$ 、解像度が508 dpiとなっており、総ピクセル数が 252×256 である。光センサ部である有機フォトダイオードは、近赤外光領域の850 nmが最大感度波長であった。また、有機フォトダイオードには大気安定な逆型構造を用いており、大気中での高い信頼性を実現している。

フレキシブル有機イメージャーに光が照射されると、有機

* 東京大学大学院工学系研究科；准教授(〒113-8656 東京都文京区本郷7-3-1)
Bio Medical Applications of Organic Devices; Tomoyuki Yokota* (School of Engineering, The University of Tokyo, Tokyo)
Keywords: *organic electronics, flexible sensor, flexible imager, fingerprint, organic photodetector*
2022年6月30日受理[doi:10.2320/materia.61.769]

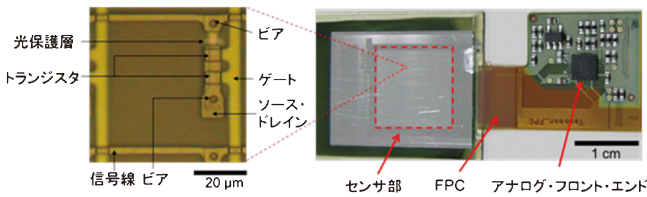
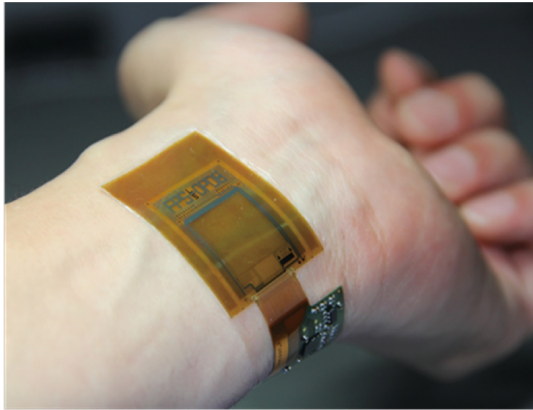


図1 フレキシブル有機イメージャー。(オンラインカラー)

半導体層が光を吸収することで、光電変換により光電流が発生し、電荷が各セルのセンサ素子のキャパシタに蓄積される。この蓄積された電荷量を信号として読み出すことで、イメージングを行うことができる。この読み出し・信号処理を行う回路部分は、フレキシブルケーブル上に実装を行っているために、フレキシブル有機イメージャーのシステム全体が高いフレキシブル性を有している。

(1) フレキシブルイメージャーの作製プロセス

次にフレキシブルイメージャーの作製方法について簡潔に説明する。フレキシブルイメージャーは、 $10\ \mu\text{m}$ のポリイミドを基板として用いており、ポリイミド上にLTPSのトランジスタバックプレーンをはじめに作製している。トランジスタは、チャンネル長が $4.5\ \mu\text{m}$ 、チャンネル幅が $2.5\ \mu\text{m}$ 、移動度が約 $40\sim 70\ \text{cm}^2/\text{Vs}$ であり、各セルにおいて、このトランジスタを2個直列に接続している。LTPS 薄膜トランジスタは、 SiO 、 SiN 、 SiO 、 a-Si の4層を成膜した後に、エキシマレーザーによってアニールを行い、 a-Si を結晶化させることによりポリシリコンを形成する。

ポリシリコンを形成した後、ホウ素とリンをドーピングすることで、それぞれPMOSとNMOSの電極を形成した。電極を形成後、絶縁膜として $70\ \text{nm}$ の SiO 、ゲート電極として $250\ \text{nm}$ の MoW を成膜した。その後、有機フォトダイオードをバックプレーン上に形成するために、厚さ $2\ \mu\text{m}$ の平滑層と封止膜を成膜した。バックプレーンと有機フォトダイオードは、封止膜にドライエッチングを用いて形成したビアを通じて接続した。

次に、有機フォトダイオードをバックプレーン上部に形成した。有機フォトダイオードのアクティブ層には、近赤外光領域($850\ \text{nm}$)に高い感度を持つ有機半導体を用いた。ま

た、酸化インジウムスズ(ITO)を透明電極として用い、ITOの表面に酸化亜鉛(ZnO)層を形成することで、電子輸送層を形成した。有機層は、ドナー材料としてPMDPP3T、アクセプタ材料としてPCBMを用いており、この2種類の材料を混合したバルクヘテロ構造を用いている。上部電極としては、PEFOT:PSSと銀を用いた。有機フォトダイオードは、厚さ $1\ \mu\text{m}$ の高分子膜で封止を行っている。最後に、レーザーリフトオフプロセスを用いることで、ポリイミド基板を支持基板として用いていたガラス基板から剥離することで、フレキシブルなイメージャーを実現した。

(2) イメージセンサの基礎特性

これまでに報告されている近赤外光に応答するフレキシブルな有機フォトダイオードは、暗電流が高いために、検出感度が低いといった課題があった⁽²⁾⁽³⁾。また、暗電流を低く抑えた有機フォトダイオードも報告はされているものの、光感度が低く生体イメージングには用いるのが難しかった⁽⁴⁾⁻⁽⁶⁾。今回、我々の開発したフレキシブル有機フォトダイオードは、ドナー材料とアクセプタ材料の混合率、有機層の膜圧を最適化することで、近赤外領域における高い光感度と、低い暗電流を同時に実現することに成功した。分光感度は、静脈認証などで用いられる $850\ \text{nm}$ の波長において、 $0.57\ \text{A/W}$ を示した。この分光感度は、従来のイメージャーなどに用いられているシリコンフォトダイオードと比較しても同等の感度となっている。また、作製した有機フォトダイオードの暗電流密度は $10^{-7}\ \text{A}/\text{cm}^2$ 以下と低く、波長 $850\ \text{nm}$ で出力が $2.9\ \text{mW}/\text{cm}^2$ の近赤外光を照射した時の光電流密度は $1.7\times 10^{-3}\ \text{A}/\text{cm}^2$ を示しており、4桁近いON/OFF比を実現した。

今回、開発したイメージャーは、高解像度と高速動作を実現するために、移動度の高いLTPSトランジスタをバックプレーンに用いている。実際、LTPSトランジスタの移動度は $10\ \text{cm}^2/\text{Vs}$ 以上あり、有機トランジスタやアモルファスシリコンの薄膜トランジスタの平均的な移動度 $1\ \text{cm}^2/\text{Vs}$ と比較して、高い移動度を有している。また、LTPSはドーパ材料を変えることで、PMOSとNMOSの両方を簡便に実現することができ、CMOS回路を形成することができるという利点を有している。また、トランジスタのON/OFF比に関しても、 $10^4\sim 10^6$ である有機トランジスタやアモルファスシリコントランジスタと比較して、 10^7 以上と大きなON/OFF比を実現している。今回作製したLTPSトランジスタは、PMOSとNMOS共に移動度が $40\sim 70\ \text{cm}^2/\text{Vs}$ 、ON/OFF比も7桁以上であり、非常に良好な特性を実現することができていた。

作製したLTPSトランジスタのバックプレーンは、 $60\ \mu\text{s}$ という高速で1セルを読み出すことができる。これは、従来報告されてきた有機トランジスタやIGZO、アモルファスシリコンを用いたトランジスタと比較して、移動度が5~10倍と高いためである⁽⁷⁾⁻⁽⁹⁾。さらに、移動度が高いためにセルを微細化することもでき、従来のフレキシブルイメージャー

よりも高精細な 508 ppi という解像度で設計されている。この高精細、高速動作する LTPS トランジスタと高感度を有する有機フォトダイオードを集積化することで、 $4.7 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ という非常に強度の低い光を高速に検出することができた。

(3) フレキシブル有機イメージャーの評価

我々の開発したフレキシブル有機イメージャーの特徴として、光学系を用いずに、皮膚に直接イメージャーを接触させるだけで、指紋を撮像することができる点がある。実際に、有機イメージャーを用いて指紋を撮像した結果を図 2 に示す。撮像した指紋の画像は、隆線の数、分岐点、端点といった特徴点のみならず、汗腺の位置まで検出できており、生体認証を行ううえで重要な指紋情報が撮像できている。先ほど述べたように、光学系を用いずに、高精細な指紋像を撮像できるため、システム全体を容易に小型化かつフレキシブル化することが可能である。

さらに、フレキシブル有機イメージャーと光学レンズを組みあわせることで、静脈を撮像することもできる。図 3 にフレキシブル有機イメージャーを用いて、指の静脈像を撮像した結果を示す。静脈を撮像するために、指の上部から近赤外の LED を用いて光を照射し、指を透過した光をレンズで集光することで、静脈の撮像を行った。今回撮像した静脈像は、静脈認証を行う上で一般的に用いられる、静脈の分岐点や分岐角度、本数などの特徴的な情報が明確に取得できている。また、有機イメージャーで撮像した静脈像は、CMOS イメージセンサを用いて撮像した静脈画像と比較したところ、ほぼ同等の像を所得できていた。

今回開発したフレキシブル有機イメージャーは、前述した通り、高速撮像も可能である。そのため、指紋や静脈といった静的な生体情報を撮像できるのみならず、脈拍などの動的な生体情報を計測することができる。従来の脈波計は、固い

センサを用いており、指先や耳たぶなどの特定の位置でしか計測できなかった。一方で、フレキシブルなセンサは、指先のみならず、手首や額等にも貼り付けることができ、脈波の計測が可能である。実際、フレキシブル有機イメージャーを用いて脈拍の測定を行った結果を図 4 に示す。開発したフレキシブルイメージャーを用いて測定した結果と市販の脈拍計を用いて測定した結果を比較したところ、どちらのセンサでも、1 分間当たり 77 拍と同じ心拍数を示していた。さらに、脈波のピーク位置の平均時間差を評価したところ、市販の脈拍計と比較して 30 ms と非常に小さい値を示しており、市販の脈拍計と同等の性能で計測することができることが確認できた。

一般的に用いられるフレキシブルな脈波計は、センサが一点のものがほとんどであった。手首などで脈波を計測する場



図 2 フレキシブル有機イメージャーで撮像した指紋画像。個人保護のために一部に加工を施している。

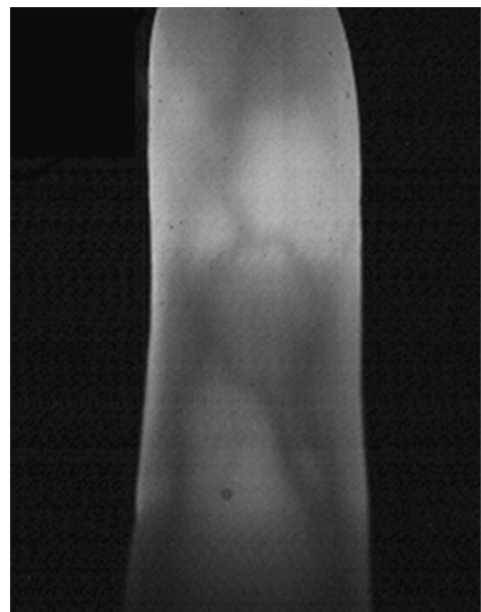


図 3 フレキシブル有機イメージャーで撮像した静脈像。個人保護のために一部に加工を施している。

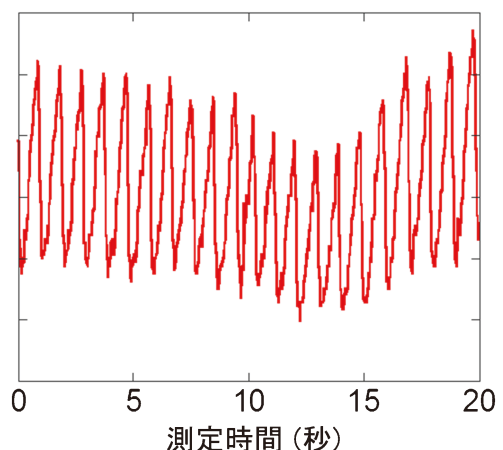


図 4 フレキシブル有機イメージャーで撮像した脈波。(オンラインカラー)

合、センサの貼り付け位置によって脈波の信号強度が大きく変わってしまう。これは、血管の近くにセンサがある場合は、脈波が安定して計測できる一方で、血管がない場所では、生体内部で反射・散乱される光が小さいために、信号強度が小さくなってしまいうためである。一方で、今回作製した有機イメージャーは、高解像度と高速撮像を実現しているために、各セルごとに脈波を計測することができる。そのため、センサの貼り付け箇所がずれた際にも、セルごとの振動強度を計測することで、最も安定して脈波を計測できる素子を選択することができる。その結果、長期的に脈波を計測することが可能となる。

(4) ウェアラブル型有機イメージャー

上述した有機イメージャーは、光源やレンズなどの光学系が集積化されておらず、ウェアラブルデバイスとして用いるためには、これらの素子をイメージャーに集積化する必要が

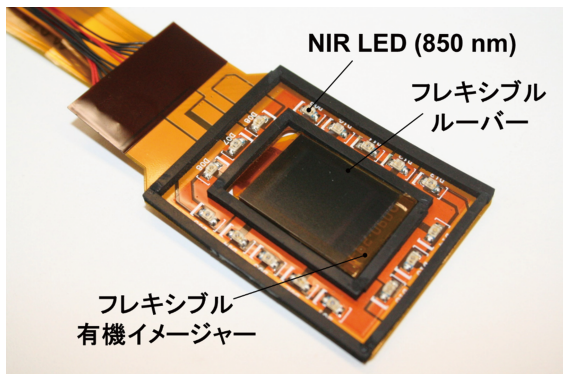


図5 ウェアラブル型有機イメージャー。(オンラインカラー)

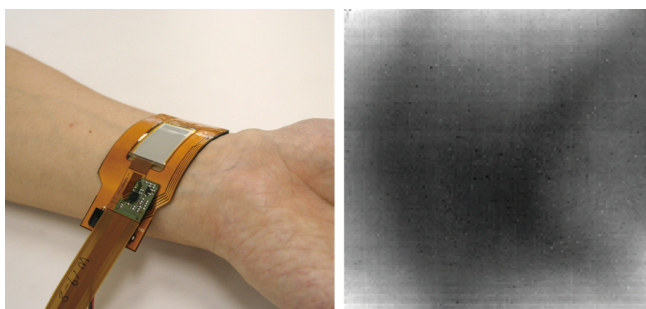


図6 ウェアラブル型有機イメージャーを用いて撮像した手首の静脈像。(オンラインカラー)

あった。そこで、図5に示すようなウェアラブル型のイメージャーの開発を行った。開発したウェアラブル型イメージャーは、フレキシブルイメージャーの周辺に、光源として16個の近赤外光のLEDチップを集積化している。さらに、静脈の撮像を行うために、光学系としてフレキシブルルーバーをイメージャー上に集積化している。LEDチップは、フレキシブル基板上に実装することで、曲げることが可能となっており、腕などの曲面にも追従することが可能である。

このウェアラブル型イメージャーを用いて静脈の撮像を行った結果を図6に示す。ウェアラブル型イメージャーは、システム全体としてフレキシブルであるために、手首の部分に巻き付けることができていることがわかる。ウェアラブル型イメージャーでは、イメージャー部分のサイズを3cm×4cmまで大きくするために、解像度を落とした素子を用いている。そのため、図3で示した静脈像と比較して、静脈の境界部分が若干ぼやけていることがわかる。一方で、静脈の分岐の形などはきちんと撮像できており、生体認証などに用いるには十分な画像であることが確認できた。

開発したウェアラブル型のフレキシブルイメージャーは、図6に示すように、光学系や光源を含めても十分に薄く、曲げることが可能である。そのため、血圧計やリストバンド型のデバイスとの集積化が容易に行うことができる。そのため、生体計測と生体認証が同時に可能な医療機器への応用が期待される。

(5) 血流イメージング

開発したフレキシブルイメージャーを用いた応用例の1つに血流の可視化があげられる。今回、開発したフレキシブルイメージャーを用いて撮像した静脈像の時間変化に関する画像に対して特異値分解を用いて解析することで、血流の可視化を行った。特異値分解は、画像解析に古くから用いられている手法で、画像の時間変化などから特徴量を抽出することが可能である(図7)。

図8に、実際の特異値分解についての概略図を示す。まず、イメージャーを用いて指の静脈像の時間変化を撮像する。今回の解析で用いた画像は18秒で1000枚撮像した静脈像である。この画像データを2次元の行列に変換し、その行列をもとに特異値分解を行った。すると、得られた画像は特異値ごとに異なる情報を含んでいることが分かった。例えば、特異値によっては、脈波の情報を含んでいるものであったり、体動ノイズを含んでいるものであったりすることがわ

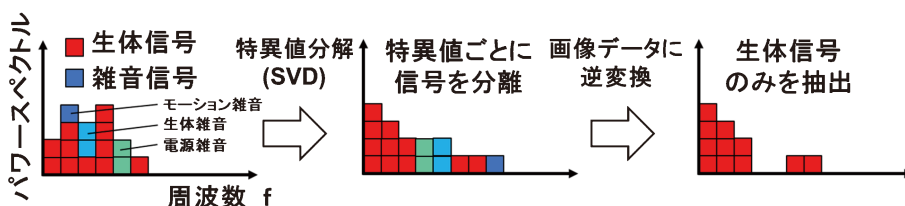


図7 特異値分解を用いた画像解析手法。(オンラインカラー)

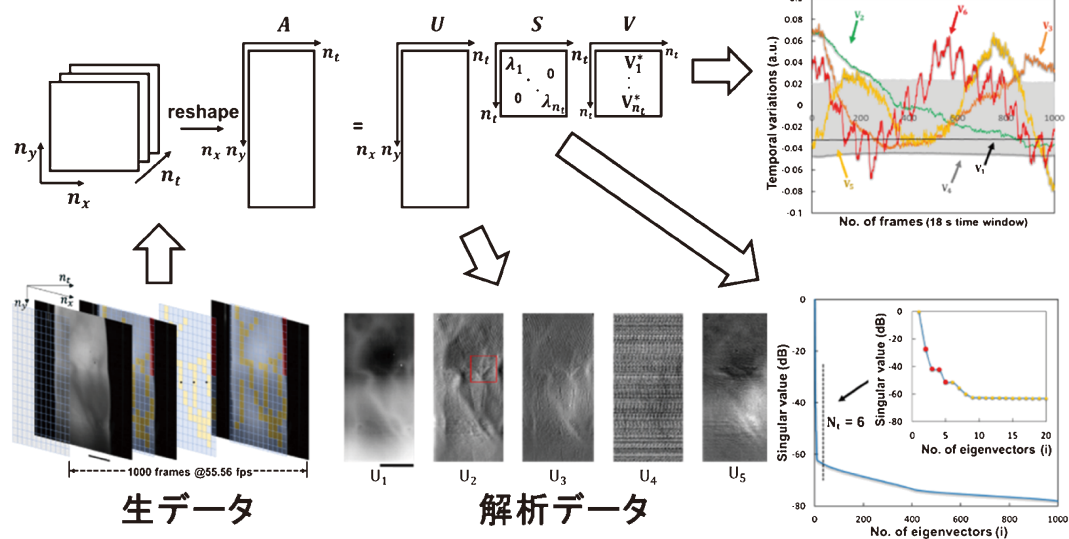


図8 撮像した静脈像に特異値分解を行った結果。(オンラインカラー)

かる。この中から、生体情報を含む特異値のみを用いて画像を再変換すると、雑音信号を低減した画像を得ることができた。このような画像を解析することで、静脈内のコントラストが時間的に変化する画像を得ることに成功した。

3. おわりに

今回我々の開発したフレキシブル有機イメージセンサは、軽量かつ薄型で、曲げることができる。そのため、ウェアラブル医療機器に容易に組み込むことができる。ウェアラブル医療機器にイメージセンサを組み込みことができれば、ユーザの生体認証を行いながら、同時に健康状態を測定することが可能となるため、近い将来、セルフケアにおけるなりすましの防止や病院における患者の取り違え防止が可能になると期待される。

文 献

(1) T. Yokota, T. Nakamura, H. Kato, M. Mochizuki, M. Tada, M. Uchida, S. Lee, M. Koizumi, W. Yukita, A. Takimoto and T. Someya: Nat. Electron., **3**(2020), 113-121.
 (2) S. Park, K. Fukuda, M. Wang, C. Lee, T. Yokota, H. Jin, H. Jinno, H. Kimura, P. Zalar, N. Matsuhisa, S. Umezumi, G. C. Bazan and T. Someya: Adv. Mater., **30**(2018), 1802359.
 (3) Z. Wu, W. Yao, A. E. London, J. D. Azoulay and T. N. Ng: ACS Appl. Mater. Interfaces, **9**(2017), 1654-1660.

(4) B. Siegmund, A. Mischok, J. Benduhn, O. Zeika, S. Ullbrich, F. Nehm, M. Böhm, D. Spoltore, H. Fröb, C. Körner, Karl Leo and K. Vandewal: Nat. Commun., **8**(2017), 15421.
 (5) T. Rauch, M. Böberl, S. F. Tedde, J. Fürst, M. V. Kovalenko, G. Hesser, U. Lemmer, W. Heiss and O. Hayden: Nat. Phot., **3**(2009), 332-336.
 (6) G. Simone, D. D. C. Rasi, X. Vries, G. H. L. Heintges, S. C. J. Meskers, R. A. J. Janssen and G. H. Gelinck: Adv. Mater., **30**(2018), 1802359.
 (7) M. Kaltenbrunner, T. Sekitani, J. Reeder, T. Yokota, K. Kuribara, T. Tokuhara, M. Drack, R. Schwödiauer, I. Graz, S. B. Gogonea, S. Bauer and T. Someya: Nature, **499**(2013), 458-463.
 (8) M. J. Powell: IEEE Trans. Electron Devices, **36**(1989), 2753-2763.
 (9) H. Akkerman, B. Peeters, A. Breemen, S. Shanmugam, D. Tordera, J. L. Steen, A. J. Kronemeijer, P. Malinowski, F. D. Roose, D. Cheyns, J. Genoe, W. Dehaene, P. Heremans and G. Gelinck: SID Sym. Dig. Tech. Papers., **49**(2018), 494-497.



横田知之

★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★
 2013年 東京大学大学院工学研究科博士課程修了
 2013年 4月-2016年 3月
 東京大学大学院工学研究科電気系工学専攻特任助教
 2016年 4月-2019年 5月
 東京大学大学院工学研究科電気系工学専攻講師
 2019年 6月- 現職
 専門分野：フレキシブルエレクトロニクス
 ◎有機半導体を用いたフレキシブルなセンサの研究に従事。
 デバイス物性などの基礎研究から医療デバイス応用まで幅広い研究を行っている。
 ★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★