

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 22 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13338

研究課題名(和文) 農業用ITに資するフレキシブル分光感度センサの開発

研究課題名(英文) Large-area, flexible sheet-type spectroscopic sensor system for IT-agriculture

研究代表者

関谷 毅 (Sekitani, Tsuyoshi)

大阪大学・産業科学研究所・教授

研究者番号：80372407

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、次世代農業用IT技術に貢献する「大面積かつフレキシブルなシート型の分光センサシステム(光による環境センサ)」を印刷技術で実現することを目的とし取り組んだ。本センサシートは1.印刷により作製した大面積有機トランジスタ駆動回路、2.バルクヘテロ接合型有機PN接合(フォトディテクタ)アレイ、3.有機発光ダイオード(LED)アレイ、4.光バンドパスフィルタの4層の機能性フィルムの積層により構成し、これをプラスチックシート)の上に作製する取り組みである。将来的に「植物の水ストレス」、「土壌のミネラル成分」の情報を大面積かつリアルタイムで検出することを目標に、この基盤技術の研究開発を行った。

研究成果の概要(英文)：We have developed large-area, flexible sheet-type spectroscopic sensor system, manufactured mainly using printing technologies, for the applications to next-generations agriculture.

This sensor system consists of four parts: 1, Printed organic transistor active matrix for driving circuit. 2, organic PN diodes with hetero-junction structure working as photo-detector, organic light-emitting diodes working as photo-source. 4, flexible band-pass filter. These four layers are independently manufactured and then, laminated with each other using anisotropic conductive films. The flexible electro-photonics system can function as spectroscopic sensor system which can realize large-area coverage capability. We have successfully developed the fundamental technology for contributing to IT-controlled agriculture system.

研究分野：電子デバイス

キーワード：有機材料 有機デバイス フレキシブルエレクトロニクス

1. 研究開始当初の背景

農業用 IT に資するフレキシブル分光感度センサの開発

《研究動向及び位置づけ》

食糧不足の問題が世界的に表面化している。さらに、我が国においても食糧自給率の向上を目指して、高効率の食料生産、高付加価値の農作物生産が進められている。これを実現するために ICT を積極的に導入する農業「スマートアグリ」が注目を集めている。基本的にはシリコンテクノロジーを用いた農作物の状態計測であるが、センサのコストが問題となり、農業分野に十分に浸透するに至っていない。大面積かつ無数のセンサ素子(センサノード)を低環境負荷、低コストで効率よく作製することで、大面積かつコスト効率に優れたセンサが強く求められている。

《着想に至った経緯》

関谷らグループでは、有機トランジスタの大面積性、軽量性、可とう性に着目し、大面積のセンサやアクチュエータに応用するという独自の研究を世界に先駆けて展開してきた。さらに、印刷作製した大面積有機発光素子アレイにより検査光を照射し、計測対象物からの反射光を有機光センサアレイで計測することで、さまざまな情報が得られることを突き止めてきた。この分光技術を用いることで農業管理に求められている大面積シート型分光センサシステムを実現できるという着想に至った。

2. 研究の目的

本研究は、農業管理に貢献する「大面積かつフレキシブルなシート型の分光センサシステム(光による環境センサ)を印刷技術で実現することを目的」とする。

この分光センサシートは1.印刷により作製した大面積有機トランジスタ駆動回路、2.バルクヘテロ接合型有機PN接合(フォトディテクタ)アレイ、3.有機発光ダイオード(LED)アレイ、4.フレキシブル光バンドパスフィルタの4層の機能性フィルムの積層により構成する。デバイスは、大面積プラスチックシート(およそ50×50 cm²)の上に作製し、この分光システムシートにより「植物の水ストレス」、「土壌のミネラル成分(例えば、窒素、リン、カリウム、カルシウム)」の情報を、大面積かつリアルタイムで検出することを目標とする基盤研究開発を行う。

3. 研究の方法

実効面積 50×50 cm² のプラスチックシート上に 16×16 の分光センサシステムを印刷

技術で試作して、原理実験を行う。同時にフレキシブルバンドパスフィルタを開発し、これを集積化することで特定の波長だけをセンシングに用いるデバイス構成を完成させる。さらに、システム全体の動作を精密に評価し、高性能化を進める。具体的には、1.センサの応答速度、2.センサの応答距離(検出限界距離)、3.空間分解能、の三つのテーマを中心に性能の向上を推し進める。平成28年度には、この分光センサシートを用いて葉表面の分光分析を行うことで、水ストレスと計測の結果の相関を評価する。また、イオン識別性分子シートとこの分光センサシートを集積化することで、土壌に含まれるミネラル成分の計測を実施し、有用性を評価する。

大面積、フレキシブル分光センサシステムの試作

【概要とねらい】

実効面積 50×50 cm² のプラスチックシート上に 16×16 の分光センサシステムを印刷技術で試作する。初年度は、有機トランジスタのチャンネル長を実績のある 50 ミクロンで作製し、駆動電圧を 60V 以下、空間分解能 5mm を数値目標に有機半導体材料の選定、構造の最適化を進める。特に、センシングする波長を選択できるように液晶技術、低ダメージ high-k 材料成膜技術によりフレキシブルバンドパスフィルタを開発する。

《LED アレイ、フォトディテクタアレイ、バンドパスフィルタの試作と集積化》

本研究では、印刷技術(インクジェットとスクリーン印刷)とフィルム加工技術を駆使して、LED 駆動用の 2 トランジスタ 1 キャパシタ構成の有機トランジスタアクティブマトリックスを作製し、塗布型 LED 発光素子と集積化することでアクティブマトリックス LED アレイを作製する。一方、フォトディテクタ読み出し用の 1 トランジスタ構成の有機トランジスタアクティブマトリックスを作製し、塗布型フォトディテクタ素子と集積化することでアクティブマトリックスフォトディテクタアレイを作製する。全体をフレキシブルバンドパスフィルタで覆い、特定波長のみを取り出すことを初年度の目標にする。

最終年度である二年目には、このシステムの有用性を検証する取り組みを計画する。特に、印刷により作製されたトランジスタは動作速度が遅く、通常 1 kHz 以上の応答速度は難しい。限られた応答速度の中で、必要な計測精度を保つことが出来るか、電気的な発光輝度や受光感度を確保できるかなどの評価を中心に取り組む。

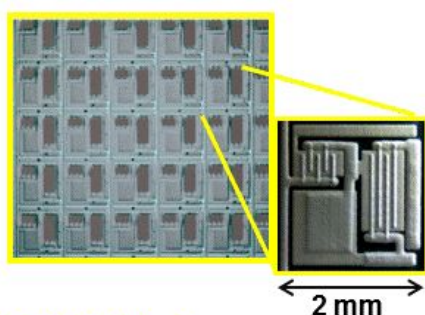
4. 研究成果

平成 27 年度の取り組みと成果：

フレキシブル分光センサシステムの試作をおこなった。プラスチックシート上に分光センサシステムの要素技術であるトランジスタ、受光素子、発光素子を印刷技術を用いて作製および実装し、試作用システムを完成させた。初年度は、有機トランジスタのチャンネル長を実績のある 50 マイクロメートルで作製した。さらに駆動電圧を 6.0V 以下、空間分解能（トランジスタを含むピクセルピッチ）を 5 mm 程度とした。

さらに LED アレイ、フォトディテクタアレイの試作と集積化、ノイズフィルタリング技術の検討を行った。

より具体的には、印刷技術（インクジェットおよびスクリーン印刷）とフィルム加工技術を駆使して、LED 駆動用の 2 トランジスタ 1 キャパシタ構成の有機トランジスタアクティブマトリックスを作製した。さらに塗布型 LED 発光素子と集積化することで、アクティブマトリックス LED アレイの作製を行った。ピクセル一つ当たりの大きさは 5 mm 角とさだめ、この中に、二つの有機薄膜トランジスタと一つのキャパシタを作製した。当初 6.0V までの駆動電圧を想定したが、ゲート絶縁膜製膜前の表面改質処理技術の開発により、高品質（高い歩留まり）かつ薄膜の絶縁膜を製作することが出来た。具体的には、1.0V 以下までの駆動が可能となり、高い歩留まりと低い駆動電圧を初年度に実現することが出来た。この技術を用いて、1.0V 以下の LED 駆動用ドライバー回路を試作した。



印刷で作製した
有機トランジスタアクティブマトリックス

図 1：5 mm ピッチで作製したトランジスタアクティブマトリックスとその拡大図。櫛歯電極がトランジスタのソース電極とドレイン電極であり、50 マイクロメートルの精度で作製することに成功した。本取り組みにより、10 マイクロメートルまでの微細化を進め、それに伴い一桁程度の応答速度向上が見られた。

LED 開発においては、比較的大気安定とされているフッ素系高分子発光材料、低分子系発光材料を選定し、フレキシブル受光素子、発光素子の作製を進めた。これを有機トランジスタ駆動素子と集積化することで、精度よく動作することを確認した。ただし、大気中での駆動時に発光素子が不安定化するなど、課題が残ったので、封止膜の選定をさらに進める必要が生じた。



図 2：印刷技術により作製した LED の一例。必要な波長を取り出すことに成功した。赤より長波長側に関しては、熱失活と思われる効果が見られ、発光効率が十分ではない。今後の改善が必要である。

平成 28 年度の取り組みと成果の概要：

平成 28 年度では、初年度に課題として残った封止膜の選定を進めた。その結果、CVD により作製した高分子膜と SiN 系の無機材料とのハイブリッド型封止膜により、数週間安定して動作する有機 LED の作製を行うことが出来た。以降は、この封止膜を用いて開発を進めていくことにした。

分光センサシートを用いて葉表面の分光分析を行うことで、水ストレスと計測の結果の相関を評価する取り組みを行った。さらに、イオン識別性分子シートとこの分光センサシートを集積化することで、土壌に含まれるミネラル成分の計測可能性を示す取り組みを進めた。

（近赤外波長域での分光分析による水ストレス計測可能性の検討）

葉表面にある植物のタンパク質は、水分摂取量により近赤外光の吸光度が変化する。すなわち、近赤外分光することで植物の受けている水ストレスを知ることができるとされている。そのため有機近赤外 LED および有機光センサによる分光システムを構築し、この水ストレス計測が可能であるかについて評価を進めた。さらにイオン識別性シートを作製する取り組みを行い、これを本研究開発で取り組んできたシステムと集積化する取り組みを進めてきた。

その結果、葉が含む水分量と吸光度などに一定の相関があることを見出した。その一方で、植物には大きな個体差があり、データの優位性とエラー（植物個体差）において、さらに慎重な検討と評価対象数の増加が必要であるとの結論に至った。

今後の計画：

本研究開発により、主要部分（主に電極）を印刷にて作製しても、分光感度センサシステムとして動作可能であることが示された。主にスクリーン印刷により作製した有機トランジスタは、平均移動度として $0.1\text{cm}^2/\text{Vs}$ 、オンオフ比 10 の 6 乗を超え、アクティブマトリックス型位置検出可能な分光感度センサシステムとして有効であることを確認することが出来た。この部分に関しては、今後、電極の微細化（現状 50 ミクロンを 10 ミクロン）にすることで、一桁以上の動作速度を向上できる予備実験に成功している。この取り組みを進めることで、さらに広い応用分野での使用を検討する。

有機 LED および有機光センサとの集積化においては、異方性導電フィルムを用いたが、この接続方法の長期的な信頼性において、不安定である可能性があり課題として残った。今後、耐環境性、高耐久性を有する接着剤メーカーとの共同研究が開始されるので、ここでこの課題を克服していく。

最後に、農業分野への実展開について記述する。葉の水ストレスを見るための近赤外における分光感度計測、土壌の成分評価するためのイオン識別センサとの集積化については、センサの要素技術としての有用性検証には成功したものの、植物の種類によりその特性は大きく異なることが課題として見えてきた。今後、JA 等の専門家組織と連携し、計測価値の高い植物に限定して、その必要とされる要求性能を明らかにするとともに、有用性検証を進めていくことにした。特に、分光感度計測では、日光等の環境ノイズに計測が大きく左右されることがわかり、この課題克服に向けても専門家との協業が必須である。農業分野の専門家と緊密連携することで、本センサシステムを実圃場にて有効に機能させるための、実証試験を進めていく予定である。

植物の多様性と個体差により、本システムの開発を統一的な植物評価に結び付けるまでには至らなかった。その一方で、独立に作製した有機 TFT アクティブマトリックス、有機 LED シート、有機光センサシート、フレキシブル工学フィルタなどのフレキシブル集積化技術の開発が進み、大きな進歩が見られた。とりわけ、異方性導電フィルムおよびペーストがフィルム集積化において極めて有用で

あることを見出したことは大きい。今後も、応用を強く意識しながら機能性フィルムデバイスを開発していき、モノとモノがインターネットを介して繋がる IoT 社会に貢献する研究開発を進めていく。

5 . 主な発表論等

（研究代表者、究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕(2 件)

1 . Ultraflexible organic amplifier with biocompatible gel electrodes

Tsuyoshi Sekitani, Tomoyuki Yokota, Kazunori Kuribara, Martin Kaltenbrunner, Takanori Fukushima, Yusuke Inoue, Masaki Sekino, Takashi Isoyama, Yusuke Abe, Hiroshi Onodera & Takao Someya

Nature Communications 7,
Article number: 11425 (2016)
doi:10.1038/ncomms11425

2 . Ultraflexible and ultrathin polymeric gate insulator for 2 V organic transistor circuits

Masaya Kondo, Takafumi Uemura, Takafumi Matsumoto, Teppei Araki, Shusuke Yoshimoto and Tsuyoshi Sekitani

Applied Physics Express, Volume 9, Number 6 (2016).

〔学会発表〕(計 2 件)

〔図書〕(計 1 件)

関谷毅

薄膜工学 第二版 丸善出版

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/ae/d/japanese/index.html>

<http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/ae/d/english/index.html>

6 . 研究組織

(1)研究代表者

関谷 毅 (Tsuyoshi Sekitani)
大阪大学・産業科学研究所・教授
研究者番号：80372407

(2)研究分担者

該当なし

(3)連携研究者

該当なし

(4)研究協力者

植村 隆文 (Takafumi Uemura)
大阪大学・産業科学研究所・特任准教授
研究者番号：30448097

荒木 徹平 (Teppeï Araki)
大阪大学・産業科学研究所・助教
研究者番号：10749518

吉本 秀輔 (Shusuke Yoshimoto)
大阪大学・産業科学研究所・助教
研究者番号：80755463