

令和 4 年 5 月 10 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2018～2021

課題番号：18H01491

研究課題名（和文）皮膚呼吸可能な貼り付け型有機光センサーの開発

研究課題名（英文）Development of skin-breathable organic optical sensor

研究代表者

横田 知之（Yokota, Tomyouki）

東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・准教授

研究者番号：30723481

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）：本研究では、極薄有機光センサーの高効率化と大気安定性の向上を実現することに成功した。これは、従来用いられていた順型構造と呼ばれる、大気不安定な材料を用いる構造から、逆型構造と呼ばれる透明電極上に大気安定な電子注入層を積層した構造を用いて、有機光デバイスを実現したことによる。作製した有機発光素子と有機受光素子を集積化することで、指に巻きつけることが可能な脈波計を実現することにも成功し、日内での脈波や血圧を計測することにも成功した。さらに、有機太陽電池と集積化することで自己発電型の脈波計を実現することにも成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

極薄のデバイスは、皮膚との密着性が高いために、生体信号の計測を安定して長期間行えることができるために、次世代のウェアラブルセンサとして注目を集めている。しかしながら、このような極薄のデバイスは、封止膜も薄く柔らかい材料にする必要があるために、大気中や皮膚上で安定してどうさせることが難しいという課題があった。本研究で実現した成果は、デバイス自体の安定性を向上させることで、極薄デバイスの安定性を劇的に向上させることに成功しており、次世代のウェアラブルエレクトロニクス的发展に大きく貢献する成果であると考えられる。

研究成果の概要（英文）：In this study, we have succeeded in improving the efficiency and air stability of ultra-thin organic optical sensors. This is due to the fact that the organic optical device is realized using an inverted structure, in which an air stable electron injection layer is stacked on a transparent electrode, instead of the conventionally used normal structure, which uses a material that is not air stable. By integrating the organic light-emitting diode and organic photodetectors, we have succeeded in realizing a pulse wave sensor that can be wrapped around a finger and used to measure pulse waves and blood pressure during the day. Furthermore, by integrating an organic solar cell with an organic optical sensor systems, we have succeeded in realizing a self-powered pulse wave sensor.

研究分野：フレキシブルエレクトロニクス

キーワード：有機発光素子 有機受光素子 フレキシブルエレクトロニクス ウェアラブルエレクトロニクス

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

近年、モノのインターネット (IoT) は計測の対象がモノからヒトへと広がりを見せており、身に着けて生体情報を計測するウェアラブルセンサが急速に発展している。ウェアラブルセンサの登場によって様々な生体信号が簡単に計測できるようになると期待されており、スポーツ、ヘルスケア、医療、福祉など多方面への応用が検討されている。その背景の中、伸縮性のある柔らかい電子素材を活用して、生体と親和性の高いエレクトロニクス (伸縮性エレクトロニクス) を実現しようとする動きが活発になっている。

伸縮性エレクトロニクスは、2003年に染谷博士らによって有機半導体を用いた伸縮性電子人工皮膚 (E-skin) がはじめて報告された。さらに、Rogers 博士らは単結晶シリコンを薄膜化して高分子基材に転写する技術で高速応答性の伸縮性センサを実現している。大面積性に優れる染谷博士の手法と高速応答性に優れる Rogers 博士の手法は相補的であり、それぞれに適した応用があるため双方とも大きく発展している。

### 2. 研究の目的

本研究では、モーションアーティファクトが少ない貼り付け型の脈拍・血中酸素濃度計を開発することを目的として、独自の伸縮性センサを駆使して生体信号を長期間に渡って高精度で計測する手法を確立する。より具体的には、ナノファイバー型メッシュ構造 (以下、NF メッシュと略す) で伸縮性の有機光デバイスを製造し、皮膚に直接貼り付けて、脈拍・血中酸素濃度を計測することによって、日常生活の中で長期的、安定的に高精度な生体信号を計測し続けることを目的とする。

### 3. 研究の方法

目的を達成するため、本研究の期間内に、以下の2項目を達成する。

**伸縮自在な有機光デバイス:** 機能性高分子材料で NF メッシュを作製する手法を確立し、伸縮性を実現する。さらに、作製した NF メッシュの上に有機光発光素子 (OLED) と有機受光素子 (OPD) を作製し、脈拍・血中酸素濃度を計測する。柔らかいクモの巣のような伸縮性の NF メッシュに信頼性の高い電気的接続を取るため、独自の伸縮性導体を駆使した伸縮性インターフェース技術を確立する。しなやかでありかつ耐久性のある素材によって、負荷がない状態を維持しつつ、連続長時間計測を達成する。

**高精度な連続長時間計測:** 生体信号の計測の際に、モーションアーティファクトの影響を低減することによって、日常生活内でも高精度に生体信号を計測することができる。このことは、運動中におけるスポーツ学において役に立つのみならず、日常生活における様々な病気の早期発見に役立つ。一方で、NF メッシュ上に有機デバイスを作製すると、デバイスの特性や安定性が問題となる。そのため、NF メッシュ上への高特性有機光素子の作製技術を確立し、さらにフレキシブルな封止技術を確立することで、信号の長期的な品質を向上する。

### 4. 研究成果

**1,2年目:** 初年度は、1マイクロメートルの薄膜基板上に大気安定な逆型有機発光素子の作製を行った。作製した有機発光素子は、20%以上の効率を示しており、センサ応用するのに十分な特性を有していた。さらに、1マイクロメートルの基板上に大気安定な有機受光素子の開発を行った。開発した有機受光素子は、近赤外領域にも高い吸収を持っており、850nm 付近で薄膜基板上に作製した有機フォトダイオードとしては世界最大の外部量子効率を実現することに成功した。これらの成果は、Nature Electronics 誌に1部採択され、様々なメディアなどに取り上げられた。この有機発光素子と有機受光素子を組み合わせることで、脈拍の検知が可能なフレキシブルデバイスの開発を行った。実際に指の上にデバイスを貼り付けることで測定を行ったところ、脈拍の検出を行うことに成功した。

さらに、メッシュ上に塗布プロセスで有機材料を成膜する技術を確立し、ポリウレタンのナノファイバーシート状に、透明なポリマー電極を形成して、筋電の測定に成功した。

**3,4年目:** 本年度は、1マイクロメートルの基板上に大気安定な有機発光素子と有機受光素子の集積化を行うことで、皮膚貼り付け型の脈波センサの開発を行った。昨年度までに開発した有機発光素子と受光素子のプロセス条件や構造の最適化を行うことで、同一基板上に異なる有機光デバイスの開発に成功した。

さらに、開発した皮膚貼り付け型脈波センサとテキスタイル型のウェアラブル心電計を組み

合わせることで、常時血圧モニタリングが可能なシステムの開発に成功した。開発した血圧モニタリングシステムは、脈波の伝搬速度より血圧を推定することが可能で、従来のカフ型と異なり、連続して血圧値を算出することが可能である。このシステムと従来のカフ型血圧計の結果を比較したとこと、相関係数が85%以上と非常に高い値を示していることを確認できた。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yokota Tomoyuki、Fukuda Kenjiro、Someya Takao	4. 巻 未定
2. 論文標題 Recent Progress of Flexible Image Sensors for Biomedical Applications	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 2004416 ~ 2004416
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/adma.202004416	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Wang Binghao、Scaccabarozzi Alberto D.、Wang Haoyang、Koizumi Mari、Nugraha Mohamad Insan、Lin Yuanbao、Firdaus Yuliar、Wang Yan、Lee Sunghoon、Yokota Tomoyuki、Anthopoulos Thomas D.、Someya Takao	4. 巻 9
2. 論文標題 Molecular doping of near-infrared organic photodetectors for photoplethysmogram sensors	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Materials Chemistry C	6. 最初と最後の頁 3129 ~ 3135
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1039/d0tc05549b	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Jiang Zhi、Yu Kilho、Wang Haoyang、Rich Steven、Yokota Tomoyuki、Fukuda Kenjiro、Someya Takao	4. 巻 6
2. 論文標題 Ultraflexible Integrated Organic Electronics for Ultrasensitive Photodetection	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Advanced Materials Technologies	6. 最初と最後の頁 2000956 ~ 2000956
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/admt.202000956	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Wang Jiabin、Lee Sunghoon、Yokota Tomoyuki、Jimbo Yasutoshi、Wang Yan、Nayeem Md Osman Goni、Nishinaka Masaya、Someya Takao	4. 巻 2
2. 論文標題 Nanomesh Organic Electrochemical Transistor for Comfortable On-Skin Electrodes with Local Amplifying Function	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Applied Electronic Materials	6. 最初と最後の頁 3601 ~ 3609
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acsaelm.0c00668	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Matsukawa Ryotaro, Miyamoto Akihito, Yokota Tomoyuki, Someya Takao	4. 巻 9
2. 論文標題 Skin Impedance Measurements with Nanomesh Electrodes for Monitoring Skin Hydration	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Advanced Healthcare Materials	6. 最初と最後の頁 2001322 ~ 2001322
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adhm.202001322	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kim Dongmin, Yokota Tomoyuki, Suzuki Toshiki, Lee Sunghoon, Woo Taeseong, Yukita Wakako, Koizumi Mari, Tachibana Yutaro, Yawo Hiromu, Onodera Hiroshi, Sekino Masaki, Someya Takao	4. 巻 117
2. 論文標題 Ultraflexible organic light-emitting diodes for optogenetic nerve stimulation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Proceedings of the National Academy of Sciences	6. 最初と最後の頁 21138 ~ 21146
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1073/pnas.2007395117	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yokota Tomoyuki, Nakamura Takashi, Kato Hirofumi, Mochizuki Marina, Tada Masahiro, Uchida Makoto, Lee Sunghoon, Koizumi Mari, Yukita Wakako, Takimoto Akio, Someya Takao	4. 巻 3
2. 論文標題 A conformable imager for biometric authentication and vital sign measurement	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nature Electronics	6. 最初と最後の頁 113 ~ 121
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41928-019-0354-7	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 Tomoyuki Yokota, Takao Someya
2. 発表標題 Conformable Imager for Biometric Data Measurement
3. 学会等名 2020 MRS Spring/Fall Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Tomoyuki Yokota
2. 発表標題 Ultra-flexible organic electronics
3. 学会等名 2020 MRS Spring/Fall Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 白山 巖、李 成薫、染谷 隆夫、横田 知之
2. 発表標題 有機光センサを用いた血圧の連続測定に関する研究
3. 学会等名 第68回 応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 島ノ江 修平、横田知之、福田憲二郎、染谷 隆夫
2. 発表標題 光電増幅効果を持つ有機フォトディテクタの大気安定性の向上
3. 学会等名 第68回 応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Tomoyuki Yokota, Takao Someya
2. 発表標題 Ultra-flexible organic photonic devices
3. 学会等名 SPIE Optics + Photonics 2018 Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔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
--	---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------