

レーザーリフトオフプロセスを用いた フレキシブル有機イメージセンサの開発

東京大学大学院 工学系研究科 電気系工学専攻
准教授 横田 知之

(2021 年度 奨励研究助成 (若手研究者枠) AF-2021237-C2)

キーワード：有機イメージセンサ，生体イメージング，有機フォトディテクタ

1. 研究の目的と背景

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) などは、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は、大きく分けて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である。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信号を取得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、撮像する速度は求められない。一方で、多点かつ細かいイメージの撮像を行う必要があり、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。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、静的な情報で必要だった高解像度を必要でない。しかし、血流のように常に変化をしているものを取得するため、高速でのイメージング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た。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¹⁻³⁾。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。フレキシブルなセンサは、従来の固いセンサと比較して、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デバイスを装着することができる。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⁴⁻⁶⁾。

本研究では、我々が近年開発したフレキシブル有機イメージセンサ技術について紹介をする。我々の開発したフレ

キシブル有機イメージセンサは、これまでのフレキシブルイメージセンサとは異なり、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センサ

2.1 作製方法

図1に我々の開発したフレキシブル有機イメージセンサのデバイス構造図とデバイス写真を示す。フレキシブル有機イメージセンサは、光センサとして近赤外光に高感度を有する有機フォトダイオード、セル選択のための素子として低温ポリシリコン (LTPS) 薄膜トランジスタのバックプレーンを集積化することで構成されている (図1)。開発したフレキシブル有機イメージセンサは、セルピッチが50 μm 、解像度が508 dpiとなっており、総ピクセル数が252 \times 256であり、受光総面積が12.6 \times 12.8 mm^2 である。光センサ部として用いている有機フォトダイオードは、近赤外光領域の850 nmにおいて最大感度を示しており、さらに大気安定な逆型構造を用いることで、大気中での高い信頼性を実現している。

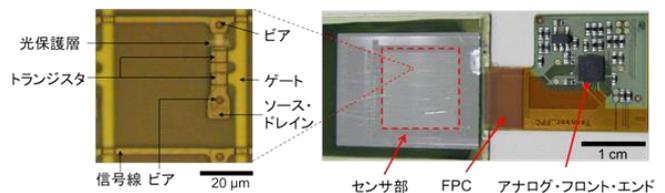
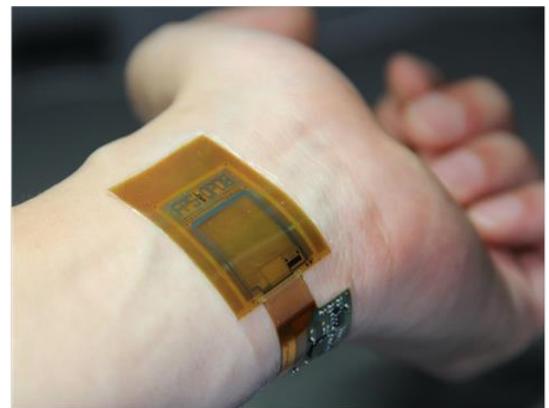


図1：フレキシブル有機イメージセンサ

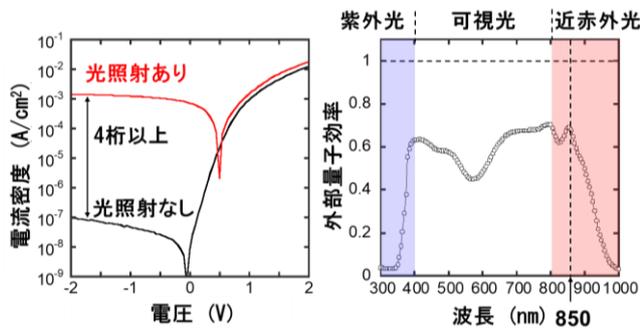


図2：有機フォトダイオードの基礎特性 (a)近赤外光を照射したとき (赤線) と暗闇 (黒線) での有機フォトダイオードの電流電圧特性。 (b)有機フォトダイオードの外部量子効率

フレキシブル有機イメージセンサに光が照射されると、有機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、微小な光の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おり、フレキシブル有機イメージセンサのシステム全体が高いフレキシブル性を有している。

次に、フレキシブルイメージセンサの作製方法について説明する。フレキシブルイメージセンサは、厚さ 10 μm のポリイミドを基板として用いており、はじめにポリイミド基板上に LTPS のトランジスタバックプレーンを作製している。作製した薄膜トランジスタは、チャンネル長が 4.5 μm 、チャンネル幅が 2.5 μm 、移動度が約 40~70 cm^2/Vs である。LTPS 薄膜トランジスタは、 SiO_2 、 SiN 、 SiO_2 、アモルファスシリコンの 4 層を成膜し、エキシマレーザーを用いてアニールを行うことで、アモルファスシリコンを結晶化させ、ポリシリコン層を形成する。ポリシリコン層を形成した後、ホウ素とリンをドーピングすることで、それぞれ pMOS トランジスタと nMOS トランジスタの電極を形成した。電極を形成後、絶縁膜として 70 nm の SiO_2 、ゲート電極として 250 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 μm 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を行っている。

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は、酸化インジウムスズ (ITO) を透明電極として用い、ITO 上部に酸化亜鉛 (ZnO) 層を形成することで、電子輸送層を形成した。アクティブ層には、ドナー材料として PMDPP3T⁷⁾、アクセプタ材料として PC_{61}BM を混合したバルクヘテロ構造を用いている。ホール輸送層と上部電極には、PEFOT:PSS と銀をそれぞれ用いた。また、有機フォトダイオードを作製後に、厚さ 1 μm 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、フレキシブルイメージセンサを実現した。

2・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^{8,9)}。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¹⁰⁻¹²⁾。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により、近赤外領域における高い感度と、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 nm の波長において、0.57 A/W を示した。この分光感度は、従来のイメージセンサ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} A/ cm^2 以下と低く、波長 850 nm で出力が 2.9 mW/ cm^2 の近赤外光を照射した時の光電流密度は 1.7×10^{-3} A/ cm^2 を示しており、4 桁近い ON/OFF 比を実現した (図 2)。

開発したフレキシブルイメージセンサは、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 cm^2/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 cm^2/Vs と比較して、高い移動度を有している。また、LTPS はドーブ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、トランジスタのオンオフ比に関しても、 $10^4 \sim 10^6$ 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 以上と大きなオンオフ比を実現している。今回作製した LTPS トランジスタは、PMOS と NMOS 共に移動度が 40~70 cm^2/Vs 、オンオフ比も 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。

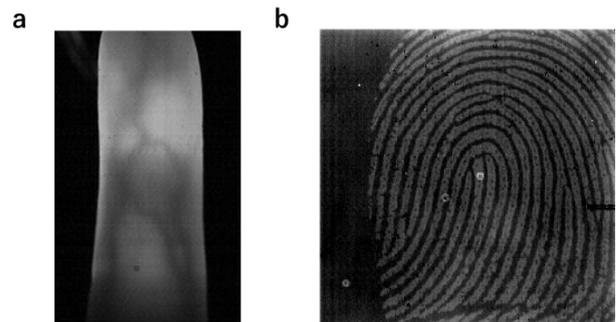


図3：フレキシブル有機イメージセンサで撮像した生体情報 (a)静脈画像 (b)指紋画像

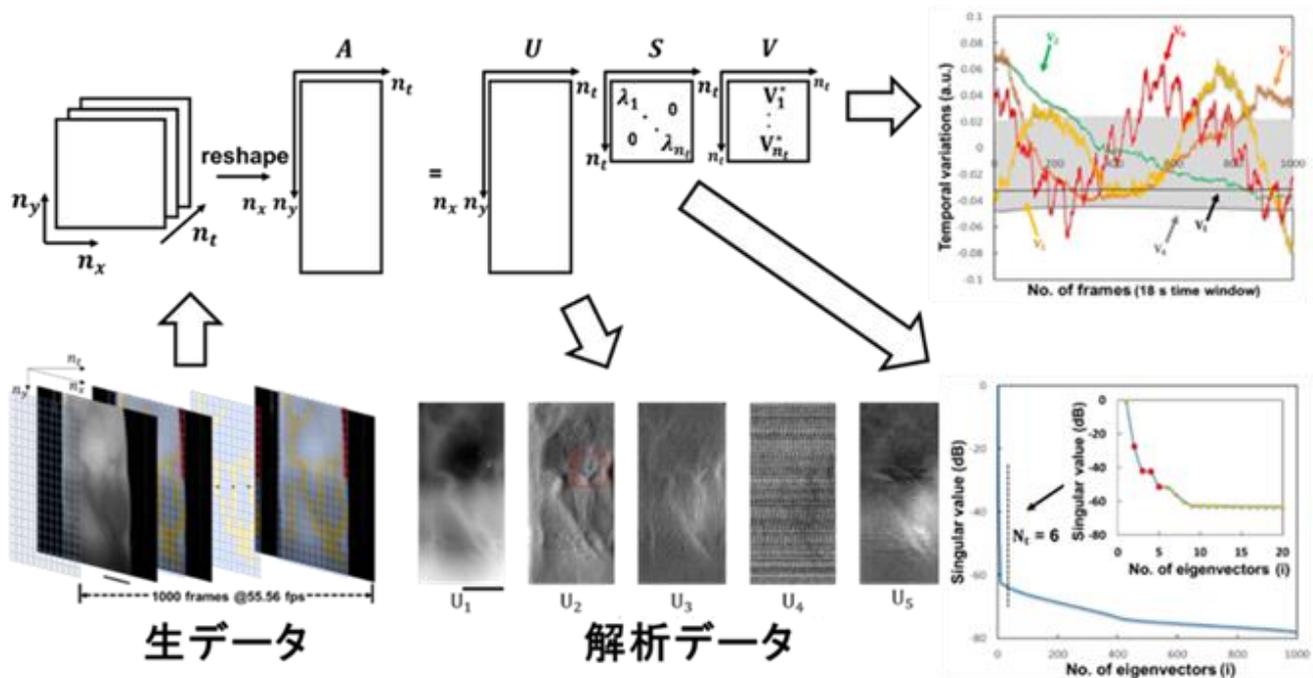


図 4：撮像した静脈像に特異値分解を行った結果¹⁶⁾

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¹³⁻¹⁵⁾。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センサよりも高精細な 508 dpi 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. 生体イメージング

我々の開発したフレキシブル有機イメージセンサの特徴として、光学系を用いずに、皮膚に直接イメージセンサ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、有機イメージセンサを用いて指紋を撮像した結果を図 3 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センサ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センサを用いて、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、有機イメージセンサ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センサは、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で、脈波の計測が可能である。開発したフレキシブルイメージセンサ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確認できた。

開発したフレキシブルイメージセンサを用いた応用例の 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センサ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 4 に、実際の特

異値分解についての概略図を示す。まず、イメージセンサ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。

4. 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。

謝 辞

本研究は、公益財団法人天田財団の一般研究開発助成 (AF-2021237-C2) を受け実施されたものであり、ここに謝意を表します。また、本研究を推進するにあたり、共同研究者の皆様に感謝感謝申し上げます。

参考文献

- [1] Lochner C. M., Khan Y., Pierre A., Arias A. C. All-organic optoelectronic sensor for pulse oximetry. *Nat. Commun.* 5, 5745 (2014).
- [2] Kim J. et al. Miniaturized Battery-Free Wireless Systems for Wearable Pulse Oximetry. *Adv. Funct. Mater.* 27, 1604373 (2017).
- [3] Wu Z., Yao W., London A. E., Azoulay J.D., Ng T. N., Temperature-Dependent Detectivity of Near-Infrared Organic Bulk Heterojunction Photodiodes. *ACS Appl. Mater. Interfaces* 9, 1654–1660 (2017).
- [4] Yokota T. et al. Ultraflexible organic photonic skin. *Sci. Adv.* 2, e1501856 (2016).
- [5] Khan Y. et al. A flexible organic reflectance oximeter array. *PNAS* 115, E11015–E11024 (2018)
- [6] Xu H. et al. Flexible Organic/Inorganic Hybrid Near Infrared Photoplethysmogram Sensor for Cardiovascular Monitoring. *Adv. Mater.* 29, 1700975 (2017).
- [7] Li W. et al. Efficient Tandem and Triple-Junction Polymer Solar Cells. *J. Am. Chem. Soc.* 135, 5529–5532 (2013).
- [8] Park S. et al. Ultraflexible Near-Infrared Organic Photodetectors for Conformal Photoplethysmogram Sensors. *Adv. Mater.* 30, 1802359 (2018).
- [9] Wu Z. et al. Temperature-Dependent Detectivity of Near-Infrared Organic Bulk Heterojunction Photodiodes. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 9, 1654 (2017).
- [10] Siegmund B. et al. Organic narrowband near-infrared photodetectors based on intermolecular charge-transfer absorption. *Nat. Commun.* 8, 15421 (2017).
- [11] Rauch T. et al. Near-infrared imaging with quantum-dot-sensitized organic photodiodes. *Nat. Phot.* 3, 332 (2009).
- [12] Simone G. et al. Near-Infrared Tandem Organic Photodiodes for Future Application in Artificial Retinal Implants. *Adv. Mater.* 30, 1804678 (2018).
- Kaltenbrunner M. et al. An ultra-lightweight design for imperceptible plastic electronics. *Nature* 499, 458 (2013).
- [13] Powell M. J. The physics of amorphous-silicon thin-film transistors. *IEEE Trans. Electron Devices* 36 (1989), 2753.
- [14] Akkerman H. et al. Printed Organic Photodetector Arrays and their use in Palmprint Scanners. *SID Sym. Dig. Tech. Papers.* 49, 494 (2018).
- [15] Dongkai C., Yokota T., Someya T., Spatiotemporal processing in photoplethysmography for skin microcirculatory perfusion imaging. *Biomedical Optics Express*, 13, 838–849 (2022).