

論文内容要旨 (和文)

令和 2 年度入学 大学院博士後期課程

有機材料システム専攻

氏 名 吉田 綾子



論文題目

High performance of flexible printed sensors

by controlling composite film morphology and their applications

(複合薄膜構造制御によるフレキシブル印刷型センサの高性能化と応用展開)

日本政府が提唱する未来社会のコンセプト、Society 5.0は、「サイバー空間とフィジカル空間を高度に融合させたシステムにより、経済発展と社会的課題の解決を両立する、人間中心の社会」と定義づけられている。この社会では、IoTですべてのものと人がつながり、様々な知識や情報共有される。フィジカル空間から膨大な量のデータを収集し、サイバー空間では人工知能によりデータを分析・最適化し、その結果がフィジカル空間にフィードバックされる。このプロセスではデータが重要になり、そのデータを取得するためのセンサは、重要な役割を果たすとともに、膨大な数が要求されることになる。

人間中心の社会であるSociety 5.0において、医療・介護は最も重要な分野の一つである。快適で健康的な生活を送るために、バイタルデータのリアルタイムモニタリングによる、病気の早期発見や予防が強く求められている。リアルタイムモニタリングには、常時身に着けていても違和感のない快適なデバイスが必要になるが、従来のヘルスケアデバイスは、サイズや重量が大きく、リッドで価格も高いものが多い。そのため、軽量で薄型、フレキシブルな新世代のヘルスケアデバイスが期待されている。また、さらに実用化に近づけるためには、低コストで生産性が高く、環境に優しいことも重要になる。

その要求に応えるための解決策のひとつが印刷技術である。従来の差分のプロセスであるフォトリソグラフィと比べ、アディティブのプロセスである印刷方式は、工程が簡略化できるとともに材料の使用効率もすぐれているため、低コスト化が期待できる。また、廃液の排出量も各段に少なく、環境の面からも期待が高まっている技術であるが、エレクトロニクスへの応用例はまだ少なく解決すべき課題も多い。

そしてもう一つの最も有望な解決策の候補が、導電性複合材料を用いた抵抗型のセンサである。導電性複合材料は、ポリマーマトリクス中に導電性フィラーを分散させたものであり、パーコレーション閾値を超える量の導電性フィラーを分散させることにより導電パスが形成される。導電性フィラーとマトリクスの選択により、様々な機能を持つ導電性複合材料を容易に実現できる。たとえば、シリコン系エラストマーなどの伸縮性ポリマーに、金属の導電性フィラーを混合した複合材料を用いることで、伸縮可能なひずみセンサを実現することができる。しかしながら、典型的な導電性複合材料は導電性フィラーをポリマーマトリクス中にランダムに分散させたものが多く、ポリマーマトリクスの単独の性質やフィラーとポリマーの相互作用に起因すると考えられる、大きな機械的・電気ヒステシスや応答速度の遅さなどの課題がある。

そこで本論文では、様々なバイタルセンシングのための新しい導電性複合材料の開発に加え、複合材料のモルフォロジーを制御することでセンサ性能を改善し、より実用的なセンサを目指し、印刷方式によるセンサの開発を目的として研究を行った。さらに、同じ印刷方式によるフレキシブルハイブリッドエレクトロニクス (FHE) 型の信号制御回路と無線通信回路を試作するとともに、開発したセンサを統合、リアルタイム計測可能なウェアラブルセンサシステムの検証を試みた。

本論文は以下 6 章で構成されている。下記にその概要を示す。

第一章では、序論として、本論文のコンセプトを把握するための背景・解説と、印刷技術やセンサ、導電性複合材料に関する基礎知識

と現状の課題、またこの課題に取り組む動機を説明する。

第二章では、材料や作製プロセスを始め、実験装置や評価方法など、この論文において実施した実験に関連する内容について述べた。

第三章では、新たに開発したセンサのひとつである湿度センサに関して、その作製方法や、メカニズム、膜のモロロジーやセンサの性能、またその応用方法の提案まで、包括的に述べた。新たな導電性複合材料として、セルロースとナノファイバーとカーボンナプレートットからなる複合材料を開発した。この湿度センサは、湿度が30%RH~90%RHの範囲における感度が240%、その際の吸湿時と脱湿時の応答速度がそれぞれ、17秒と22秒であり、感度が高くさらに応答速度も非常に優れていることを示した。

第四章では、新たに開発した伸縮性ひずみセンサに関して、同じく包括的に述べた。導電性複合材料として、ポリジメチルシロキサン(PDMS)とカーボンブラック(CB)、さらに深共晶溶媒(DES)を混合することにより、自発的に相分離が発生し、作製したインクを印刷しアニールするだけで、簡単にポーラス構造を持った導電膜を得ることができることを示した。またこの自己相分離型導電膜中で、CBはPDMSにできた空孔壁の内側に偏析しており、PDMS中への分散は非常に少ないことが分かった。そのため機械的ヒステシスは9.9%と非常に小さく、マトリックスポリマーであるPDMSとほぼ同等の値を示した。またこの膜を用いたひずみセンサは、高感度で低ヒステシスであり、安定性や信頼性においても良好な結果が得られ、優れた性能を示した。このセンサを体の様々な箇所に装着したところ、脈波から指の動きまで、あらゆる動きを検出できることが明らかになった。

第五章では、スクリーン印刷技術を用いて、FHE型の信号処理回路と無線通信回路を開発した。FHEデバイスは有機と無機を組み合わせ、有機のフレキシビリティとSi-LSIの高性能な特性を両立したデバイスであるが、今回、Si-LSI以外の部分をすべて印刷法で作製した電子回路の結果について説明した。

第六章では、本研究にて得られた成果をまとめるとともに将来展望についてもまとめた。

本論文は、導電性複合薄膜を用い、材料や組成、さらに構造をコントロールすることで、バイタルセンシングに最適な、優れた性能を持つフレキシブルセンサを開発した。これらのプロセスは、すべて印刷法を用いたため、環境に優しくとともに、低コスト化、大面積化にも対応可能な技術である。本成果を公開することにより、さらにフレキシブル有機デバイスへの研究開発が加速されるとともに、Society5.0社会の実現に資することを期待する。

論文内容要旨 (英文)

令和 2 年度入学 大学院博士後期課程

有機材料システム専攻

氏 名 Ayako Yoshida



論 文 題 目 High performance of flexible printed sensors
by controlling composite film morphology and their applications

Healthcare and caregiving are significantly important fields in Society 5.0. To promote a comfortable and healthy living, early detection of diseases through real-time monitoring of vital data in wearable sensors are strongly required. Therefore, lightweight, thin, and flexible sensors for the wearable healthcare are highly desired.

In this thesis, several high-performance flexible sensors for vital sensing have been developed by employing novel conductive composite films. New materials strategy, especially micro-morphology, was proposed to overcome the issues of hysteresis and slow response in the characteristics of the flexible printed sensors. The conductive composite inks were prepared to control the morphology. In addition, wireless communication circuit based on flexible hybrid electronics technologies was developed using the printing method, and a wearable sensor system with real-time measurement was verified by integrating with the developed sensors.

This thesis consists of the following six Chapters:

Chapter 1 is the introduction part of this thesis. The motivation and purpose are described in detail.

Chapter 2 is the experimental section of this thesis. The materials used in this study, fabrication methods, and characterization techniques are introduced in this part.

Chapter 3 is the development of a novel flexible humidity sensor based on all-carbon based conductive composite, which exhibited high sensitivity and fast response.

Chapter 4 is the development of a novel stretchable strain sensor based on a segregated conductive composite, which show excellent strain sensitivity and low hysteresis.

Chapter 5 is the integration of the flexible hybrid circuits with the developed flexible sensors, which realized wireless real-time healthcare monitoring.

Chapter 6 is the conclusion and perspective of this study.

This study presented new materials strategy and fabrication processes for high performance flexible sensors, and flexible printed integrated circuits for system integration. The sensing system can be applied to various uses in the coming new society, Society 5.0.

学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

令和 5 年 2 月 7 日

有機材料システム研究科長 殿

課程博士論文審査委員会

主査 時任 静士 印
副査 伊藤 浩志 印
副査 高橋 辰宏 印
副査 関根 智仁 印
副査 印

学位論文の審査及び最終試験の結果を下記のとおり報告します。

記

論文申請者	有機材料システム専攻 氏名 吉田 綾子		
論文題目	High performance of flexible printed sensors by controlling composite film morphology and their applications (複合薄膜構造制御によるフレキシブル印刷型センサの高性能化と応用展開)		
学位論文審査結果	合格	論文審査年月日	令和 5 年 1 月 30 日～ 令和 5 年 2 月 6 日
論文公聴会	令和 5 年 2 月 6 日	場 所	工学部 10 号館 4 階大会議室
最終試験結果	合格	最終試験年月日	令和 5 年 2 月 6 日

学位論文の審査結果の要旨 (1,000 字程度)

本論文は、導電性複合材料を用いて、印刷法により高性能かつ実用的なフレキシブルセンサを実現するとともに、印刷型の無線通信回路も開発しセンサと統合することで、バイタルの常時計測に適応可能なフレキシブルなセンサシステムの実現を目指したもので、計 6 章から構成されている。

第 1 章では、研究背景と本論文の目的・構成を記載している。また、将来の社会の中でフレキシブルなセンサとセンサシステムが果たす役割の重要性についても述べている。

第 2 章では、実験パートとして、材料やインク・デバイスの作製方法、デバイスの評価方法等を詳細に記載している。

第 3 章では、セルロースナノファイバーとグラフェンナノプレートレットを用いた湿度センサの作製において、組成を制御することで、環境にやさしい全カーボンベースのフレキシブル湿度センサを実現したことを記載している。

第 4 章では、自己相分離型の導電性複合材料を用いた伸縮性歪みセンサの作製について述べている。ポリジメチルシロキサン(PDMS)と深共晶溶媒(DES)とカーボンブラック(CB)からなる導電性複合材料を用い、自己相分離による多孔質構造膜を形成することで、ヒステリシスの小さい伸縮性歪みセンサを実現するとともに、そのメカニズムを明確にしている。

第 5 章では、リアルタイムモニタリングを可能にする、印刷型のフレキシブル無線通信回路を作製し、上記センサと統合、これまでにないフレキシブルセンサシステムを実現し、ヘルスケアにおけるバイタルの常時計測の可能性を検証できたことを記載している。

第 6 章では、本研究の成果を総括するとともに、本研究がフレキシブルエレクトロニクス分野の研究開発を加速させ、ウェアラブルヘルスケアへの本格的な応用を促進する可能性について言及し、本論文をまとめている。

研究テーマには新規性・独自性があり、自ら研究を計画・遂行するための専門的知識を基に、研究背景・目的が明確に述べられていた。学位論文の構成は適切で、体裁も整っており、記述は論理的で、設定した研究テーマに沿った明確な結論が述べられていた。以上から、本論文は工学における学術的探究と有機デバイスの実用化への貢献という観点より、博士(工学)の学位を授与するに十分であると判断された。また本研究成果は、学術論文(2 報掲載済み)によってまとめられており、当該専攻の審査基準も満たしている。以上を総合的に判定し、研究成果および研究内容ともに工学的貢献が十分に認められたため合格と判定した。

なお本論文は、利益相反等に係る学内規則に基づく手続きは必要ありません。

最終試験の結果の要旨

最終試験は、50 分の学位論文内容の口頭発表および 25 分の質疑応答により実施した。発表では、研究の背景・目的について述べ、その後具体的なデバイスの材料や作製方法及びメカニズムについて説明し、実現したデバイスの特性に関して説明するとともに、応用展開の可能性についても明確に説明がなされた。質疑応答では、材料選択の根拠やメカニズム、実際の用途に適応する際の必要性能、また先行技術に対する本研究成果の位置づけに関して質問があった。これに対し申請者は適切かつ具体的に回答できた。この結果、博士(工学)として必要とされる専門知識および研究遂行能力を十分に備えているものと判断し、最終試験を合格とした。