生体表面における無線計測に関する研究

高松 泰輝

2022年2月

早稲田大学審査学位論文 (博士)

生体表面における無線計測に関する研究

高松 泰輝

早稲田大学大学院情報生産システム研究科

2022年2月

目次

第1章 序論	1
1.1 はじめに	1
1.2 バイオデバイスの概要	1
1.3 スマートコンタクトレンズ	2
1.4 研究の目的	3
1.5 本論文の構成	4
1.6 参考文献	5
第2章 ワイヤレス給電システム	7
2.1 はじめに	7
2.1.1 無線電力伝送の歴史	8
2.1.2 伝送方式の分類	9
2.1.3 電磁波の安全性	11
2.2 磁界共鳴結合を用いたワイヤレス給電システム	12
2.2.1 LCR 共振回路	13
2.2.2 インピーダンス整合	15
2.2.3 ワイヤレス給電システムの設計	16
2.2.4 共振回路の作製と評価	19
2.2.5 ワイヤレス給電システムの構築と評価	23
2.2.6 ワイヤレス給電システムの数値解析	25
2.2.7 ワイヤレス給電システムの改善	28
2.3 眼球を想定したワイヤレス給電の性能評価	32
2.3.1 回転モデルを用いた数値解析	33
2.3.2 LED 点灯システムへの応用	37
2.4 導電性高分子を利用した電解重合による異種材料の接着	40
2.4.1 導電性高分子	40
2.4.2 電気化学的電解重合法	41
2.4.3 接着手法の評価	44
2.5 おわりに	48
2.6 参考文献	49
第3章 ハイブリッド・ウェアラブル電源	52
3.1 はじめに	52
3.1.1 バイオデバイスにおける電源の種類と課題	52
319 ハイブリッド電源の開発動向	5.4

3.2 ワイヤレス給電システムと金属空気電池	56
3.2.1 卑金属コイルを用いた共振回路の作製と評価	56
3.2.2 金属空気電池の作製と評価	62
3.3 コンタクトレンズ型ハイブリッド電源	67
3.3.1 導電性高分子を利用した異種材料の接着	67
3.3.2 発電性能の評価	70
3.3.3 生体適合性の検証	75
3.4 おわりに	77
3.5 参考文献	78
第4章 酵素電極を用いたパッシブ型バイオセンサ	80
4.1 はじめに	80
4.1.1 無線情報通信	81
4.1.2 LCR 共振器を用いたパッシブ型バイオセンサ	82
4.2 酵素電極を用いたバイオセンサ	84
4.2.1 酵素の種類	84
4.2.2 酵素電極の作製と評価	85
4.3 パッシブ型バイオセンサ	91
4.3.1 システム設計と実装	91
4.3.2 性能評価	94
4.4 磁界共鳴結合によるワイヤレス・バイオセンシング	96
4.5 おわりに	98
4.6 参考文献	99
第5章 パリティ-時間対称性を用いた高感度なワイヤレス・バイオセンシング	103
5.1 はじめに	103
5.1.1 パリティ-時間対称性	103
5.1.2 並列型 LCR 共振回路における Q 値	105
5.2 数値モデリング	106
5.2.1 固有値の解析	106
5.2.2 結合係数の解析	110
5.2.3 入力インピーダンスの解析	111
5.3 磁界共鳴結合系におけるパリティ-時間対称性の実装	113
5.3.1 ゲイン共振器の設計と作製	113
5.3.2 ロス共振器の設計と作製	117
5.3.3 パリティ-時間対称性の実装と評価	118
5.4 パリティ-時間対称性を用いた生化学情報の無線計測	121
5.4.1 涙中グルコースの無線計測	121

5.4.2 血中ラクテートの無線計測	129
5.5 おわりに	134
5.6 参考文献	135
第6章 結論	140
付録 A 高周波回路の取り扱い	142
A.1 S パラメータ	142
A.2 スミスチャート	143
A.3 定在波	144
付録 B 磁界共鳴結合系の固有値導出	146
謝辞	153
研究業績	154

第1章 序論

1.1 はじめに

近年の IoT (Internet of Things) 技術の普及に伴い、モノが発する膨大な情報を数値化し、集積・蓄積するシステムが世界中で注目を集めている。中でも計測対象をヒトの生体情報としたバイオデバイスは、ユーザの健康管理という枠を越えた、より専門的な検診や疾病予測を可能にすることから次世代医療システム:IoMT (Internet of Medical Things) として注目を集めている[1]. 事実、今後の IoMT 市場は 2022 年までに \$ 158 billion に上ることが予測されており (2017 年は \$ 41 billion)、多くのヘルスケア事業が新たなビジネスモデルの導入を検討している[2]. 一方で、2020 年から猛威を振るう COVID-19 の急激な感染拡大は、医療現場における病床逼迫や人手不足を引き起こしており、自宅療養を余儀なくされる患者が相次いでいる。自宅療養者の健康観察においては、血中酸素飽和濃度を非侵襲的に計測するパルスオキシメータが必要不可欠であり、その需要は近年急速に高まっている[3]. このように在宅で生体信号を計測できるバイオデバイスは、医療資源不足を解消することに加え、高齢者の見守りに活用できることから疾病の早期発見に繋がる新たな医療機器としての期待が高い、本章では、バイオデバイス全般と本研究で取り扱うコンタクトレンズ型デバイスについて概説した上で、本研究の目的と本論文の構成を述べる.

1.2 バイオデバイスの概要

現状,生体情報を計測する医療用デバイスは,リストバンド式やスマートテキスタイルと いった体表取り付け型のデバイスが主流であり、多くは血圧や体温、心電図といったバイタ ルサインを取得することに用途が限定されている. しかしながら, 心筋梗塞の予測に使われ る心電図の検査精度はおよそ 50%に留まるという報告があるように[4], バイタルサインの みに依存した検査手法では得られる生体情報に限りがある. 従って, 近年では, より信頼性 の高いバイオマーカー(医学的指標)の取得が重要視されており、分子レベルでの生化学情 報を計測するバイオデバイスの開発が進んでいる[5].これらは,汗や唾,涙,血液といっ た生物の体液に対して, 電気化学反応や磁気作用, 光や音波を利用することで生化学情報を 定量化し[6-7],より高度な POCT(Point of Care Testing)を実現するものである.また, バイオデバイスの IoMT 化により,特殊な設備環境や専門医といった事前条件に制約され ない簡易的な疾病診断が可能となるためその開発意義は大きい[8]. しかしながら、体液計 測を目的としたバイオデバイスの開発には,ウェット環境特有のプロセス開発や生体近傍 における電源確保の問題、生体情報の計測、コストといった多くの課題が残る、とりわけ、 眼球や口腔, 臓器といった脆弱な生体組織付近では, 柔軟性やサイズ, 生体安全性を意識し た特殊な要素開発が求められる.そこで、本研究ではバイオデバイスの1例として、近年注 目を集めるスマートコンタクトレンズの開発を行うことで、バイオデバイス特有の共通課 題を解決し、当該分野の技術発展に貢献する. 具体的には、スマートコンタクトレンズにおける電源確保と生体情報計測を達成するため、「無線」を活用したワイヤレス給電とワイヤレス・バイオセンシングを実現する.

1.3 スマートコンタクトレンズ

スマートコンタクトレンズとは、無線通信システムや生体情報を計測するセンサなどを 組み込んだコンタクトレンズ型バイオデバイスであり,2014 年の Google による概念実証 を皮切りに世界中で開発が進められている。また、コンタクトレンズは、医療用装具として の取り扱いやすさに加え, 圧倒的な非侵襲性と生体親和性が実証されているデバイス・プラ ットフォームである[9]. 現在市販されているコンタクトレンズは、主に屈折異常の補正を 目的とするのに対して、スマートコンタクトレンズの用途は以下の 3 つに大別することが できる:①視覚拡張,②疾病治療,③生体情報計測(Figure 1.1).まず,スマートコンタク トレンズへの期待の1つとして視覚の拡張・補完が挙げられる.これまでは、コンタクトレ ンズ上に表示された像の網膜投影は困難とされていたが、2019年、幾何学的位相を実現可 能なメタサーフェイスをディスプレイとコンタクトレンズ間に組み込むことで,ホログラ ム的な網膜投影を成功させた事例がある[10] (Figure 1.1a). このような新材料の応用によ り、コンタクトレンズを用いた AR (Augmented Reality) の実現が現実味を帯びてきた. ま た,元来眼に備わっている機能を補完する試みとして,導電性高分子である PEDOT:PSS ディスプレイを用いた人口虹彩[11] (Figure 1.1b) や, テレスコープ内蔵型コンタクトレン ズ[12] (Figure 1.1c) が提案されており、無虹彩症患者の虹彩機能代替や弱視患者の視覚補 強を目的としたデバイス開発が進められている.また,眼疾病の治療を目的としたコンタク トレンズの開発も進められており、マイクロポンプ搭載型[13] (Figure 1.1d) や酵素駆動型 [14] (Figure 1.1e) といったオンデマンドな投薬機能が実現されている.一方,眼疾病の診 断を目的としたコンタクトレンズの開発も進められており, 例えば, 網膜疾患や白内障の手 術検査に利用される網膜電位:ERG (Electroretinogram) を計測対象とした,グラフェン製 の電気信号計測レンズが実証されている[15] (Figure 1.1f). また, 日本人の失明原因第1位 と第2位である緑内障と糖尿病網膜症を発病する患者が年々増えていることを背景として, バイオマーカーである眼圧:IOP(Intraocular Pressure)とグルコースを計測する医療用レ ンズの開発も進められている[16-17] (Figure 1.1g-h). 他方, コンタクレンズが涙液と直接 触れるという特色を活かし, 免疫反応に関わるコルチゾール[18] (Figure 1.1i) や電解質[19], 眼孔内 pH[20]の計測も実証されている.

以上より、スマートコンタクトレンズは、多岐に渡る用途開発や融合研究により、その実 用性が期待されたバイオデバイスの代表例であると言える.

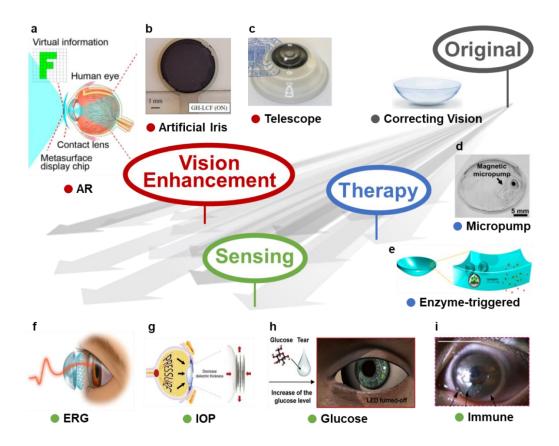


Figure 1.1 Functionalities of smart contact lens devices (modified from [10-18]).

1.4 研究の目的

スマートコンタクトレンズの開発において核となる課題は電源の確保である.一般的な 医療用デバイスの駆動には、内臓電池のような組み込み型電源を使用するが、コンタクトレ ンズ表面といった限られたスペースにこれらを搭載するには、電池の小型化や薄膜化が必 要不可欠となる.そこで、本研究では磁界共鳴結合を利用したワイヤレス給電技術の確立を 目指し、コンタクトレンズに搭載した電子素子の無線駆動に試みる.また、電源出力の向上 を狙い、生体環境下ならではのハイブリッド電源(ワイヤレス給電と金属空気電池)を開発 することで、バイオデバイス全般における新たな電源確保手法を提案する.

一方,スマートコンタクトレンズを用いた生体情報計測を行う上で,バイオセンサの導入は必要不可欠である。よって、生体親和性を有し、かつシンプルな回路設計で機能するバイオセンサの需要は高い。本研究では、並列型 LCR 共振器と酵素電極を組み合わせることで、生化学情報の変化に伴い負荷変調を行うパッシブ型バイオセンサを提案・実装する。また、磁界共鳴結合を利用することで、生化学情報の無線計測に試みる。一方で、従来までの磁界共鳴結合系においては、その Q 値(信号の鋭さ)に起因したセンサ感度の低さが課題として残されていた。そこで、本研究では量子力学的知見であるパリティ・時間対称性を結合系に落とし込むことで、システムの Q 値改善とセンサ感度の向上に取り組む。

1.5 本論文の構成

本論文は全6章から成る(Figure 1.2)、第1章は緒言であり、研究背景と課題および目的を述べた。第2章では、磁界共鳴結合系を基盤としたワイヤレス給電システムを設計・実装し、その性能評価を行う。また、作製したワイヤレス給電システムのスマートコンタクトレンズ応用を目的として、給電回路とコンタクトレンズの電気化学的な接着を行う。第3章では、涙液環境下における効果的な電源確保を目的として、第2章で取り上げたワイヤレス給電に金属空気電池を組み合わせたハイブリッド電源の提案を行う。第4章では、バイオデバイスによる生化学情報の定量化を目的として、第2章で取り上げた並列型LCR共振器と酵素電極を組み合わせたパッシブ型バイオセンサを実装すると共に、その性能評価と実環境に即した無線計測を行う。第5章では、第4章で構築した無線計測システムの感度向上を目的として、量子力学的知見であるパリティ-時間対称性を応用した損失の極めて少ない無線計測系を構築する。また、作製したパッシブ型バイオセンサと組み合わせることで高感度な生化学情報の無線計測を行う。最後に、第6章にて本研究を総括する。Figure 1.2に示す通り、本論文の内容は、大きくバイオデバイスにおける電源確保(黄色)とセンシング(緑色)に分類できる。また、第3・4・5章は、第2章で開発した磁界共鳴結合系を基盤とした応用研究である。

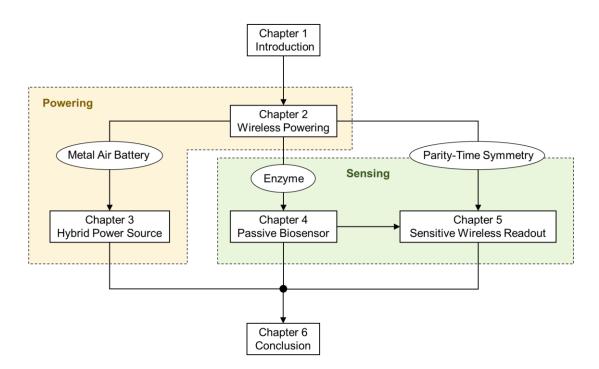


Figure 1.2 The framework of this dissertation.

1.6 参考文献

- [1] Sarmad Mehrdad, Yao Wang, S. Farokh Atashzar, "Perspective: Wearable Internet of Medical Things for Remote Tracking of Symptoms, Prediction of Health Anomalies, Implementation of Preventative Measures, and Control of Virus Spread During the Era of COVID-19", Front. Robot. AI, 2011.
- [2] Deloitte Centre for Health Solutions' report, "How connected medical devices are transforming health care", 2018.
- [3] 小坂誠, 吉田愛, 大江克憲, "パルスオキシメータの原理", 日本集中治療医学雑誌, Vol. 23, No. 6.
- [4] N. Herring, D. J. Paterson, "ECG diagnosis of acute ischaemia and infarction: past, present and future", *An International Journal of Medicine*, Vol. 99, Issue 4, 2006.
- [5] Brian M. Cummins, Frances S. Ligler, Glenn M. Walker, "Point-of-care diagnostics for niche applications", *Biotechnol Adv.*, Vol. 34, Issue 3, 2016.
- [6] Mohammad Zarei, "Portable biosensing devices for point-of-care diagnostics: Recent developments and applications", *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, Vol. 91, 2017.
- [7] Anjum Qureshi, Yasar Gurbuz, Javed H. Niazi, "Biosensors for cardiac biomarkers detection: A review", *Sensors and Actuators B*, Vol. 171–172, 2012.
- [8] Mohammad Zarei, "Advances in point-of-care technologies for molecular diagnostics", *Biosens Bioelectron*. Vol. 98, 2017.
- [9] Ryan Chang Tseng, Ching-Chuen Chen, Sheng-Min Hsu, Han-Sheng Chuang, "Contact-Lens Biosensors", *Sensors*, Vol. 18, Issue 8, 2018.
- [10] Shoufeng Lan, Xueyue Zhang, Mohammad Taghinejad, Sean Rodrigues, Kyu-Tae Lee, Zhaocheng Liu, Wenshan Cai, "Metasurfaces for Near-Eye Augmented Reality", ACS Photonics, Vol. 6, Issue 4, 2019.
- [11] Andrés Vásquez Quintero, Pablo Pérez-Merino, Herbert De Smet, "Artificial iris performance for smart contact lens vision correction applications", *Scientific Reports*, 10, 14641, 2020.
- [12] Glenn M. Schuster, Ashkan Arianpour, Scott Cookson, Arthur Zhang, Lee Hendrik, Tyrone O'Brien, Agusto Alvarez, and Joseph E. Ford, "Wink-controlled polarization-switched telescopic contact lenses", *Applied Optics*, Vol. 5, Issue 32, 2015.
- [13] Cong Wang, Jungyul Park, "Magnetic micropump embedded in contact lens for on-demand drug delivery", *Micro and Nano Systems Letters*, Vol. 8, Issue 1, 2010.
- [14] Ho-Joong Kim, Kangyi Zhang, Laura Moore, Dean Ho, "Diamond Nanogel-Embedded Contact Lenses Mediate Lysozyme-Dependent Therapeutic Release", ACS Nano, Vol. 8, Issue 3, 2014.

- [15] Rongkang Yin, Zheng Xu, Ming Mei, Zhaolong Chen, Kai Wang, Yanlin Liu, Tao Tang, Manish Kr. Priydarshi, Xuejuan Meng, Siyuan Zhao, Bing Deng, Hailin Peng, Zhongfan Liu, Xiaojie Duan, "Soft transparent graphene contact lens electrodes for conformal full-cornea recording of electroretinogram", *Nat Commun*, 9, 2334, 2018.
- [16] Joohee Kim, Minji Kim, Mi-Sun Lee, Kukjoo Kim, Sangyoon Ji, Yun-Tae Kim, Jihun Park, Kyungmin Na, Kwi-Hyun Bae, Hong Kyun Kim, Franklin Bien, Chang Young Lee, Jang-Ung Park, "Wearable smart sensor systems integrated on soft contact lenses for wireless ocular diagnostics", *Nat Commun*, 8, 14997, 2017.
- [17] Jihun Park, Joohee Kim, So-Yun Kim, Woon Hyung Cheong, Jiuk Jang, Young-Geun Park, Kyungmin Na, Yun-Tae Kim, Jun Hyuk Heo, Chang Young Lee, Jung Heon Lee, Franklin Bien, Jang-Ung Park, "Soft, smart contact lenses with integrations of wireless circuits, glucose sensors, and displays", *Science Advances*, Vol. 4, Issue 1, 2018.
- [18] Minjae Ku, Joohee Kim, Jong-Eun Won, Wonkyu Kang, Young-Geun Park, Jihun Park, Jae-Hyun Lee, Jinwoo Cheon, Hyun Ho Lee, Jang-Ung Park, "Smart, soft contact lens for wireless immunosensing of cortisol", *Science Advances*, Vol. 6, Issue 28, 2020.
- [19] Ali K. Yetisen, Nan Jiang, Carmen M. Castaneda Gonzalez, Zeynep Izlen Erenoglu, Jie Dong, Xingchen Dong, Simon Stößer, Martin Brischwein, Haider Butt, Maria F. Cordeiro, Martin Jakobi, Oliver Hayden, Alexander W. Koch, "Scleral Lens Sensor for Ocular Electrolyte Analysis", Adv. Mater. Vol. 32, Issue 6, 1906762, 2019.
- [20] Rafia Sarah Riaz, Mohamed Elsherif, Rosalia Moreddu, Ijaz Rashid, Muhammad Umair Hassan, Ali K. Yetisen, Haider Butt, "Anthocyanin-Functionalized Contact Lens Sensors for Ocular pH Monitoring", ACS Omega, 4, 2019.

第2章 ワイヤレス給電システム

2.1 はじめに

IoMT 化が加速し、様々なバイオデバイスが開発され始めると、デバイスの課題は電源の 確保(安全性・小型化)に集約される.バイオデバイスの電源は,主にどのようなエネルギ ーを利用するかという点で独立型と伝送型に分けられる(Table 2.1). 中でも, 独立型の代 表例であるリチウム電池は最もなじみのある電源であり、過去40年でペースメーカーや補 助人工臓器、ドラッグデリバリーシステムに利用されてきた歴史をもつ[1]. 特に、その電 力密度は他の電源と比較して非常に大きな値であり, 5~10 年の耐久性をもつことから長期 使用を目的としたバイオデバイスに適すると言える.一方で,定期的な電池交換における手 術は患者にとって大きな負担であり, 感染症リスクを高めるなどの課題を残していた. 加え て, 電池サイズや潜在毒性の点から, リチウムイオン電池の導入には技術的制約がある[2]. このことから, 真の意味で長期使用を達成するためには, 自己発電や外部充電機能を備えた メンテナンスフリーな電源が必要であると言える. そこで近年, 改めてその有効性が評価さ れ,様々な電子デバイスへの応用が期待されるのがワイヤレス給電である.これは,外部装 置から照射された電磁波を利用する伝送型の給電方法であり、独立型の電源と比較して安 定した電力を確保できるというメリットがある. 通常, 電磁波によるワイヤレス給電は2つ のアンテナによって実装され、両者間の相互結合によりエネルギーがやり取りされる. 特に、 医療用デバイスに利用されるワイヤレス給電には,電磁誘導方式が採用されており,磁界を 介したエネルギー伝送が行われる.また,磁界は誘電体に対してほとんど作用しないため, 生体環境下での貫通力・伝送効率が高いというメリットがある[3]. このような利点を踏ま えた結果、本研究ではワイヤレス給電を主体としたバイオデバイスを開発する、

本章では、まずワイヤレス給電の核となる無線電力伝送について概説すると共に、動作周 波数やデザイン、配置といった観点から、実装したワイヤレス給電システムの評価を行った。 また、導電性高分子を用いた電解重合法により、作製した給電回路をコンタクトレンズ上に 接着することで、コンタクトレンズ型デバイスとしての評価を行った。

	カ	テゴリー	エネルギー	電力	メリット	デメリット
独立		リチウム イオン電池		10 ² オーダー [W h/kg]	高容積エネルギー密度, 耐久寿命	小型化制限, 毒素流出の危険性
	独立型	金属-空気電池	電気化学	10 ³ オーダー [W h/kg]	高電力密度,環境適用性	ライフタイム
		生体燃料電池		10 ¹ オーダー [μW/cm ²]	反応選択性,生体適合性, 低環境負荷	ライフタイム,低電力出力
	伝送型	無線給電	電磁波	~150 [mW]	高電力出力,安定性, ライフタイム	周波数制限,暴露量制限, 外部出力電源の必要性

Table 2.1 Summery of various powering methods.

2.1.1 無線電力伝送の歴史

無線電力伝送に関する技術革新はおよそ 200 年前からスタートとしていたと考えられている。1831 年、ファラデーによって電磁誘導則が発見され、時間的に変化する磁界と誘導起電力の関係が説明されると、1864 年、マクスウェルは電場と磁場によって生じる電磁波の存在に関して理論的な仮説をたてた[4]。その後、1888 年、ヘルツによって電磁波の存在が実験的に証明されると、マクスウェルの方程式は一般的に認知されるようになった[5]。このように、1800 年代後期には、既に現在の通説である電磁波理論が確立されていたことが分かる。さて、ここまでの電磁波に関する研究は、概念実証や法則の導出が主な目的だったのに対し、ニコラ・テスラはそれらを応用したデバイス発明や遠距離通信に試みたことから、無線伝送のパイオニアと称されている。1890 年に発明した真空管のワイヤレス点灯、1898 年に実施した模型ボートの遠隔無線操縦は現代の交流システムや高周波技術に大きく貢献するものであった。加えて、1901 年にはじまった電波送電塔、ウォーデンクリフ・タフーの用途は現代におけるインターネットの原型に近い技術概念であったと言える[6]。これらの歴史的な試みを機に、世界各国で電磁波技術の応用が進むこととなる。

1990 年代になると、日常生活で利用する小型端末機器へのワイヤレス給電を目的としたシステム開発が盛んになり、シェーバーやコードレス電話機等への応用が行われた。ここでは、コイルを用いた磁界結合による近距離の電力伝送が主流であったが、給電効率が著しく低かったことから大きな普及には至らなかった歴史がある。このような状況を一変させたのが、マサチューセッツ工科大学 (MIT) が 2007 年に提唱した共鳴送電という技術である。これは伝送方式として電磁誘導方式に似た構造を示すが、決定的な違いは送電用のコイルにキャパシタンスを加え LC 共振現象を引き起こした点にあり、結果としてワイヤレス給電の飛距離が伸長した。この特性により、60 cm のヘリカル型コイルを用いて、60 W 用電球を 2 m の距離から 40 %以上の伝送効率によって点灯させることに成功している [7-8] (Figure 2.1)。この発表により、無線給電システムを用いた電子デバイスへの関心は再び高まっていった。



Figure 2.1 An experimental demonstration of wireless power transfer using magnetically coupled resonators (quoted from[7]).

2.1.2 伝送方式の分類

無線電力伝送方式に関してそれらを区別する重要な要素は、媒介として利用するエネルギーの種類である。これらは、一般的に磁界・電界・電磁波のエネルギーによって区分される[9-10].無線電力伝送は広義に捉えると、伝送距離による分類が可能である(Figure 2.2). 1つ目は、小型端末機器へのワイヤレス給電を目的とした近傍電磁界による短・中距離の伝送(非放射電磁界の利用)であり、2つ目は放送波や通信波を電波として伝播させることを目的とした遠距離伝送(放射電磁界の利用)である。短・中距離の伝送においては、非放射の近傍電磁界がエネルギーを運搬しているのに対して、遠方界における伝送は無線通信で使用される電波伝送方式と同様の仕組みを利用しており、フリスの伝達公式(通信の自由空間伝送の基本方式)に従うものである。各伝送方式における電気回路的な構造(Figure 2.3)と特性(Table 2.2)をまとめた、以下に各伝送方式の詳細を記す。

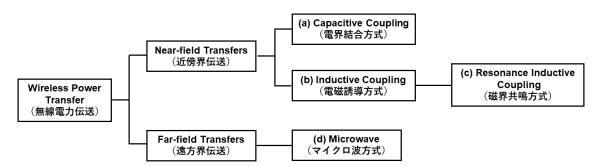


Figure 2.2 Classification of wireless power transfer (WPT) systems.

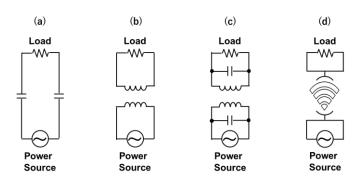


Figure 2.3 Four types of WPT structures.

Table 2.2 A performance comparison of four types of WPT systems.

	Туре	Freq	Directivity	Range	Penetrability	Efficiency
(a)	Capacitive Coupling	Hz-kHz	Weak	mm-cm	Strong	High
(b)	Inductive Coupling	Hz-kHz	Weak	mm-cm	Strong	High
(c)	Resonance Inductive Coupling	Hz-MHz	Weak	cm-m	Strong	High
(d)	Microwave	GHz-THz	Strong	cm-km	Weak	Low

(a) 電界結合方式

静電エネルギーを媒介とする伝送方式であり、送電側と受電側との間にコンデンサをかませた構造をもつ。このコンデンサに高周波の変位電流を流すことで近傍界での非接触電力伝送が可能となる。近距離の電極間においては、平等電界が実現しやすいので水平方向の位置ずれに強いというアドバンテージがある一方で、空気中での放電防止として一定以上の電界強度を使用できないという制約がある。

(b) 電磁誘導方式

電磁誘導方式は磁界結合とも言われ、送受電コイル間で共通に鎖交する磁束を利用したエネルギー伝送方式である。この現象はファラデーの電磁誘導法則に基づいており、まず、送電側に流した交流電流によりコイル周辺に交流磁束が発生する。この磁束が受電側のコイルに鎖交すると磁束の侵入を妨げる向きに電流が流れる、これにより負荷抵抗で電力が消費される。2つのコイル間における電力伝送効率は、コイル間の結合度合いに依存し、具体的にはコイルのサイズや伝送距離、配置的なずれによって大きく変動する。特に、コイル間の距離が大きくなりすぎると漏れ磁束が大きくなるため、著しく給電効率が低下する。

(c) 磁界共鳴方式

電磁誘導方式の伝送路を等価的に共振回路となるよう設計することで、回路的な Q 値を 高めた結合方式である。磁界共鳴方式は結合係数が低下しても高効率な伝送が維持できる 点や伝送距離を伸長できることから電磁誘導方式の弱点であった距離的な制約を解消でき る方式であると言える。一般的に、特定の周波数に共振するコイルを作製する場合、波長と 周波数の関係から、低周波になるにつれコイルの巻き数やサイズは増大する傾向にある。し かしながら、本章で利用するソフトコンタクトレンズは直径が約 13~14 mm の円形であり、 限られた表面上にコイル素子を実装する必要がある。ここで、磁界共鳴方式の特徴として、 キャパシタなどの静電容量をコイルに組み込むことで、コイルの自己共振点を低周波側に シフト可能であるため、コイルの巻き数を抑制することができる。これらの特徴を踏まえ、 本研究では磁界共鳴方式を採用した無線電力伝送システムを構築することとした。

(d) マイクロ波方式

電磁波の一種であるマイクロ波を利用した伝送方式である。太陽発電衛星からのワイヤレス電力伝送を目的として古くから開発が進められてきた方式であり、遠距離の送電が可能である。基本構成は携帯電話やラジオ放送に用いられる無線通信システムとほぼ同じであり、送電側のアンテナにパラボラアンテナやアレーアンテナが利用される。現状、マイクロ波方式を利用した無線給電の応用例としては、航空機やドローンといった飛翔体、または地上の移動体が検討されている。しかしながら、一般的にマイクロ波帯における電磁波は水分や生体組織といった誘電体に熱作用を及ぼすといった欠点がある。

2.1.3 電磁波の安全性

無線電力伝送の医療デバイス応用を検討する際,重要な懸念事項の1つに電磁波が身体に及ぼす影響が挙げられる.そこで本項では,電磁波生体影響に関する概要と本研究で使用するワイヤレス給電システムの動作周波数について説明する.ただし,低周波やマイクロ波による健康への影響は,未解明な部分が多く残されているため,あくまでも現状の報告に留めることとする.

無線電力伝送に使用される電磁波の周波数帯域は主にkHz~GHzであり、その特性は300 MHzを基準として用途や作用が異なる。300 MHz~3 GHz の帯域は UHF (Ultra High Frequency) と呼ばれ、携帯電話の通信(800 MHz~2.2 GHz)や、電子レンジ・無線 LAN(2.45 GHz)に利用される。この2.45 GHz はしばしばマイクロ波帯とも呼ばれる。一般的に、UHF 帯域の電磁波(電波)は波長が四肢や頭部のサイズに近いため、人体と共振することで電磁波エネルギーが生体組織に吸収されやすいという特徴を持つ。一方、300 MHz以下の周波数帯域における電磁波は長距離伝播特性に優れることから、遠距離での放送・通信に使用されてきた。特に30 MHz 以下の電磁波に関しては、磁界による身体内での電流誘起を促すため、磁界強度に関する規制が設けられている。電磁波の生体影響は国際非電離放射線防護委員会(ICNIRP)によって詳細に報告されており、周波数や電力密度に関するガイドラインが存在する。

さて、300 MHz 以上の周波数帯域では電磁波による生体組織への熱作用が強くなることが分かっているが、これは、極性分子をもった水分が高い誘電率を有しているため、電磁波のような交流成分が印加された時に誘電損失(電気エネルギーが熱エネルギーとして失われる現象)を引き起こすことが原因とされている。また、印加される交流の周波数が上がるにつれて相対的な電磁波エネルギーの吸収は大きくなるとされている[11]。加えて、人体を構成する生体組織には多量の水分が含まれていることからも、無線電力伝送の周波数には300 MHz 以下で可能な限り低い周波数帯域を割り当てるべきである。スマートコンタクレンズは、涙液に浸された眼球表面(誘電体)での使用を目的とするため、貫通性や伝送効率の観点から磁界優勢の結合方式が最適であると考えた。以上より、第2・3では産業・科学・医療分野用の機器に割り当てられた ISM バンド(Industrial Science and Medical Band)に従った13.56 MHz を動作周波数帯域として利用する。一方、第4・5章では後述する技術的な理由により、88 MHz 付近の動作周波数を利用するものとする。

2.2 磁界共鳴結合を用いたワイヤレス給電システム

前節でまとめた各伝送方式の特性と電磁波の生体影響を鑑みた結果、本節では、13.56 MHz の周波数帯域を利用した磁界共鳴方式によるワイヤレス給電システムの開発を行う、磁界共鳴方式を達成するワイヤレス給電システムは主にトランスミッターとレシーバーと呼ばれる1対の共振回路で構成される. 共振回路の基本的な構成はインダクタンス素子(L)、キャパシタンス素子(C)、レジスタンス素子(R)であり、これらを並列ないしは直列に接続することで任意の共振点をもった高周波回路が作製可能である. 磁界共鳴方式実装の鍵は、送信側のトランスミッター回路と受信側のレシーバー回路での共振点を一致させる点にある. 即ち、各共振器において、最適なコンデンサの容量や数、コイルの巻き数やサイズを予め選定しておく必要がある.

Figure 2.4 に本章で実装するワイヤレス給電システムの概要図を示す. スマートコンタクトレンズは LCR 共振器を基盤としたレシーバーにより構成され、トランスミッター側で発生した高周波磁界を受信することでワイヤレス給電を行う. そのため、受信側コイルの円直径はソフトコンタクトレンズに収まる 12 mm とした. 一方、トランスミッターついては、コイルを眼鏡フレームに固定することで、3 次元的な位置ずれを起こさず、安定したワイヤレス給電が可能となる. よって、送信側コイルの円直径は眼鏡フレームに収まる 35 mm とした. 次に、コイルの巻き数に関する条件について、送信側コイルの巻き数には特別な制約がないため 5 巻きとした. 一方で、受信側コイルはコンタクトレンズ表面への搭載を想定していることから、できる限りシンプルなデザインにすべきであると考えた. よって、コンタクトレンズ側のコイル巻き数は 1 巻きとした. 各コイルの素材や直径に関する詳細は後述する.



Figure 2.4 Schematic illustration of our WPT system.

2.2.1 LCR 共振回路

本節では 13.56 MHz で共振する高周波回路を設計する. 磁界共鳴方式の実装に必要なトランスミッターとレシーバーは LCR 共振回路にて構成される. 基本的な接続例としては LCR 直列共振回路と LCR 並列共振回路が挙げられる (Figure 2.5). どちらも, 特定の周波数でインピーダンスが急激に変化する点において相違はないが, 変化の仕方や用途が異なっている. まず LCR 直列共振回路について, 回路全体のインピーダンスは式 (2.1) のように表現することが出来る.

$$Z = R + j(\omega L - \frac{1}{\omega C})$$
 (2.1)

回路の共振条件はリアクタンス成分が 0 になる場合: $(\omega L - \frac{1}{\omega c}) = 0$ であり、共振時のインピーダンスはレジスタンス成分 (R) のみとなる。このとき、LCR 直列共振のインピーダンスは最小となるため、回路としては最大の電流値を取り出すことができる(Figure 2.6 a)一方、LCR 並列共振回路について、回路全体のインピーダンスは式(2.2)のように表現することが出来る。

$$Z = \frac{1}{\frac{1}{R} + j(-\frac{1}{\omega L} + \omega C)}$$
 (2.2)

回路の共振条件はリアクタンス成分が 0 になる場合: $(\omega C - \frac{1}{\omega L}) = 0$ であり、共振時のインピーダンスはレジスタンス成分 (R) のみとなる。このとき、LCR 並列共振のインピーダンスは最大となるため、回路としては最大の電圧値を取り出すことができる(Figure 2.6 b)

本研究では、第 $2\cdot 3$ 章で紹介する LED をベースとしたバイオデバイスや、第 $4\cdot 5$ 章で紹介する酵素電極を用いたパッシブ型バイオセンサの性質上、一貫して LCR 並列回路を利用するものとする。ここで、LCR 並列回路の共振特性を直感的に理解するため、回路のインピーダンス特性を示す(Figure 2.7)。図中では、周波数に対するインピーダンスの実部成分(レジスタンス)と虚部成分(リアクタンス)が示されている。共振点($f=f_0$)において、実部成分(Re(Z))は急激に増加するのに対して、虚部成分(Im(Z))は 0 になる。これは、共振周波数において LCR 並列回路のインピーダンスがレジスタンス成分のみであることを表している。以降では、LCR 共振回路の電気的な評価方法について解説し、ワイヤレス給電システムへの応用を図る。

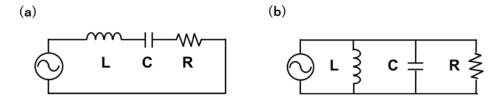


Figure 2.5 Circuit diagrams of (a) a series LCR resonance circuit, and (b) a parallel LCR resonance circuit.

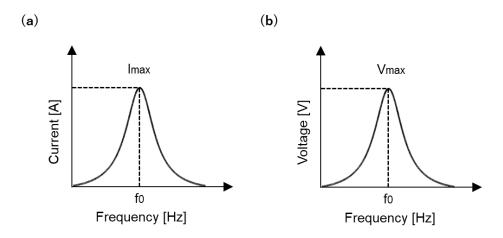


Figure 2.6 Electrical characteristics of (a) a series LCR resonance circuit, and (b) a parallel LCR resonance circuit.

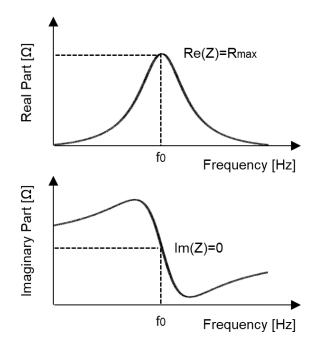


Figure 2.7 A graph of LCR parallel circuit impedance; the real part (top), and the imaginary part (bottom).

2.2.2 インピーダンス整合

インピーダンス整合とは高周波回路の周波数的電気特性を調整することを意味し、発振回路から出力される電力を効率よく負荷回路まで伝える際に利用される手法である。例えば、伝送路を介した電力の受け渡しにおいて、送り出す側の出力インピーダンスと、受け取る側の入力インピーダンスを等しくすることが出来れば、受信回路で得られる電力が最大となる。低周波回路では、一般的にインピーダンスのリアクタンス成分という概念が存在しないため、いわゆるレジスタンス成分のみを整合すれば良い。しかしながら、高周波回路におけるインピーダンス整合では、インダクタンス(L)やキャパシタンス(C)に起因するリアクタンス成分を無視することが出来ないため、より複雑な整合作業が必要となる。具体的には、コイルやコンデンサといった電子素子の組み合わせにより整合回路を作製する。整合回路の設計には、スミスチャートによる描画(スミスチャートの詳細は付録 A を参照)やリターンロスといった指標を用いる。リターンロスとは、入射波が被測定物に対して反射するとき、どの程度の損失が生じるかという概念であり、反射係数(Γ)によって表される(Γ の詳細は付録 A を参照)。式(2.3)に示すように、リターンロスは反射係数の絶対値をデシベル表示したものであり、さらにマイナス符号をとった値である。ここで、反射係数の本質は $\Gamma = \rho \angle \phi$ と解釈することができ、 ρ は反射係数の大きさ、 ϕ は位相を指す.

Return Loss [dB] =
$$-20 \log_{10} |\Gamma| = -20 \log_{10} \rho$$
 (2.3)

一方, 反射係数の計測にはネットワークアナライザの使用が一般的であり, S パラメータと 呼ばれる散逸パラメータとして取り扱うことになる(S パラメータの詳細は付録 A を参照). 反射係数は S_{11} や S_{22} と表記され, Γ と同義である.ネットワークアナライザで得られる反射 係数はデシベル表示($20\log_{10}|S_{ii}|$ [dB])で取得されるため,リターンロスと符号が反転す る点に注意する. Figure 2.8 にスミスチャートとデシベルで表現された LCR 並列共振回路 の反射特性例を示す.(a)の回路では、共振点(リアクタンス成分=0)においてインピーダ ンスが $50~\Omega$ となるため、反射係数は 0 となり、送電された信号のほぼ全てを負荷抵抗で消 費していると言える. この特性をデシベル表示で確認すると, 共振点において大きなマイナ ス値が得られたことが分かる.これは,ほぼ完全にインピーダンス整合がとれた LCR 並列 共振回路であると言える.一方, (b)の回路では, 共振点(リアクタンス成分=0) において インピーダンスが非常に高くなるため,反射係数は 1 に近づく.これは,回路における電力 消費がほとんど行われていないことを意味する.一方で,共振時のインピーダンスの高さは, 理想的な LC 並列共振特性として見られることが多い. 即ち, 回路自体は共振点において非 常に高いエネルギーを保持しているが,それらを消費する負荷抵抗がない状態とも言える. このように、反射係数を活用することで、様々な高周波回路のインピーダンス特性を評価す ることができる. 本研究では、特に S_{11} や S_{22} を用いて LCR 共振回路の反射特性を評価する.

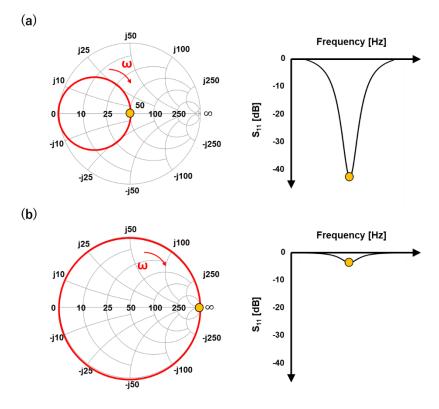


Figure 2.8 Smith chart and reflection coefficient of (a) impedance matching, and (b) impedance mismatching circuits.

2.2.3 ワイヤレス給電システムの設計

本項では、実際に作製するワイヤレス給電システムの設計を行う。 1 対の並列型 LCR 共振回路を使用した無線電力伝送システム例を Figure 2.9 に示す。電力源である発振器から生成された電気エネルギーは、ソース抵抗 (R_S) を介してトランスミッター回路へ伝播する。その後、電気エネルギーはトランスミッターである共振回路を通過することで、高周波磁界に姿を変え空気中へと出力される。この磁界はレシーバーである共振回路で受信され、最終的には負荷抵抗 (R_L) で消費される。このとき、エネルギーのやりとりは共振周波数帯域で行われる。以上が、ワイヤレス給電システムのメカニズムである。本研究で作製するレシーバーは、コンタクトレンズ上への搭載を想定しているため、構成要素であるコイルの巻き数やサイズに制約がある。従って、比較的小さなインダクタンスしか発生させることができず、エネルギーを受信する能力が低下してしまう。これを解決するために本研究では、トランスミッター側の共振特性を改善することで、システムにおける電力伝送効率の向上に成功した。具体的には、LC 共振回路を LCC 共振回路に変更することで共振点における反射係数の半値幅を狭帯域化した。以上を加味した結果、本研究で開発するワイヤレス給電システムの回路図は Figure 2.10 のように定めた。ここで、寄生抵抗 (R_{T1}, R_{R1}) はコイルに含まれる内部抵抗を意味する.

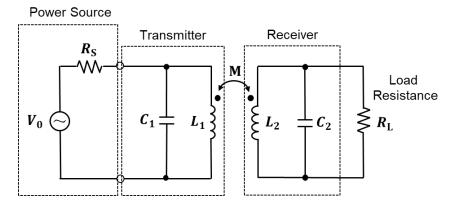


Figure 2.9 The equivalent circuits for a simplified WPT system.

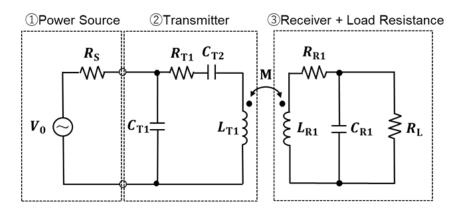


Figure 2.10 The equivalent circuits for our WPT system.

具体的に作製するデバイスは、図中の②トランスミッターと③レシーバーおよび負荷抵抗に該当する部分である。ここで、トランスミッター側のコンデンサ(C_{T1} 、 C_{T2})および、レシーバー側のコンデンサ(C_{R1})は、各共振回路において共振周波数(13.56 MHz)を決定する上で重要な要素であり、回路方程式を解くことで算出可能である。トランスミッターおよびレシーバーに関する電気回路を Figure 2.11 に示す。

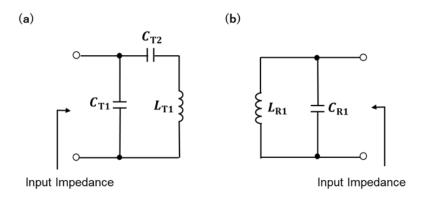


Figure 2.11 Electrical circuits of (a) the transmitter, and (b) the receiver.

(a)について、トランスミッターの入力インピーダンスをアドミタンスで表現すると式(2.4)のようになる.

$$Y = j(\omega C_{T1} - \frac{\omega C_{T2}}{(1 - \omega^2 L_{T1} C_{T2})})$$
(2.4)

ここで、リアクタンス成分は共振時に 0 となることから以下の関係式が現れ、これを周波数に関する式として展開することで、トランスミッターにおける共振周波数が導出可能となる.

$$\omega C_{\text{T1}} - \frac{\omega C_{\text{T2}}}{(1 - \omega^2 L_{\text{T1}} C_{\text{T2}})} = 0$$

$$f = \frac{1}{2\pi} \cdot \sqrt{\frac{1}{L_{\text{T1}} C_{\text{T1}}} + \frac{1}{L_{\text{T1}} C_{\text{T2}}}}$$
(2.5)

同様に、レシーバーについても共振周波数を導出可能である。入力インピーダンスをアドミタンスとして表現すると式(2.6)のようになる。

$$Y = j(\omega C_{R1} - \frac{1}{\omega L_{R1}}) \tag{2.6}$$

このとき、共振点においてリアクタンス成分が 0 になるという条件を考慮すると共振周波数は以下のように算出される.

$$f = \frac{1}{2\pi} \cdot \sqrt{\frac{1}{L_{R1}C_{R1}}} \tag{2.7}$$

このように、リアクタンス素子(キャパシタンス/インダクタンス)を適切に選定することで共振周波数を予め設定することが可能であり、磁界共鳴結合の実装に役立てることができる。加えて、抵抗素子を適切に選定することでインピーダンス整合を達成することができる。本章で取り扱う送信側コイルに関してはサイズ的な制約がないことから直径0.216 mm の銅線を使用した。一方、受信側コイルについては、瞬目動作における装用者への負担軽減を目的として、直径0.1 mm の金線(株式会社ニラコ製品)を素材として選んだ。後述するが、この金線の厚さはプレス機によって薄膜化可能であり、後半の実験データでは主にプレス後の金線を使用する(厚さ約0.04 mm)。以上、トランスミッターおよびレシーバーに使用する電子素子の値が定まった。これら設計パラメータの情報をTable 2.3 にまとめた。次項ではこの設計パラメータに基づき実際のデバイスを作製する。

	Transmitter	Receiver
Material	Copper	Gold
Wire Diameter	0.216 mm	0.1 mm
Coil Diameter	35 mm	12 mm
Number of turns	5: N _{T1}	1: N _{R1}
Inductance (measurement data)	2100 nH: L _{T1}	34 nH: L _{R1}
Capacitor in parallel	500 pF: C _{T1}	4700 pF: C _{R1}
Capacitor in series	68 pF: C _{T2}	
Parasitic Resistance (measurement data)	1.2 Ω: R _{T1}	0.18 Ω: R _{R1}

Table 2.3 A list of electrical parameters for the transmitter and receiver.

2.2.4 共振回路の作製と評価

前項で定めたコイルの素材や巻き数、コンデンサの容量、各素子の接続配置を基に、トランスミッターとレシーバーを作製した。それぞれの外観図と回路図を Figure 2.12 に示す。(a)トランスミッターについて、コイルはハンドメイドであり、銅線まわりには熱収縮チューブ(黒色)を着用した。これは漏電防止や近接した導線どうしの接触を避けるためである。特に、1周以上の巻き数をもつループコイルでは、銅線間のギャップはインダクタンスを決定する重要な要素となる。従って、銅線どうしの接触を避け、ギャップ距離を均一に保つ必要がある。また、銅線と各電子素子(チップ抵抗やチップコンデンサ)の接着にはハンダを利用した。一方、(b)レシーバー回路の電子素子接着については Ag ペーストを用いた。Agペーストは液体の状態で使用可能であり、接着面の塗布が容易である。また、120℃のホットプレート上で 30 分間の加熱を施すことにより Ag ペーストが凝固し、導電率を有する接着剤として機能する。

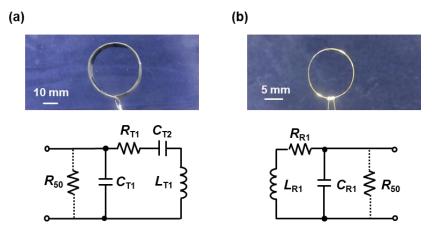


Figure 2.12 Photographs and equivalent circuits of (a) the transmitter, and (b) the receiver.

次に、作製したデバイスの評価を行う、ワイヤレス給電を目的とした高周波回路設計では、 如何にして給電対象からの反射を少なくするかという点に重きが置かれる. また, トランス ミッターからレシーバーまでの電力の伝わりやすさは電力伝送効率という概念で検討する. 本項では、上記 2 つの項目に着目しながら作製した共振器を評価する. 作製したデバイス が 50 Ωの系に対してどの程度,反射または伝達しているかを評価するためには,S パラメ ータの利用が一般的である.反射係数(S_{11} , S_{22})はネットワークアナライザで計測可能で あり、デシベル表現やスミスチャート上へのプロットを駆使することで、回路のインピーダ ンス特性を確認することができる. 反射係数を計測する場合, ネットワークアナライザの入 力端とデバイス本体を繋げる必要があり、このとき使用するのが SMA コネクタである.こ れは,ネットワークアナライザのケーブルと同様,50 Ωの同軸であるため,ネットワーク アナライザ/SMA コネクタ間では完全なインピーダンス整合がとれている. Figure 2.13 に トランスミッターと SMA コネクタを接合した写真を示す. 項(2.2.2) で解説したように、 反射係数とは接続された被測定対象が 50 Ωの系に対してどれだけ離れているかを示す指 標であり, 被測定対象内でエネルギーがどの程度減衰したかを評価するものである. 反射係 数のデシベル表示がマイナスに大きくなるほど,計測対象内でエネルギーが消費されてい るとみなせるため、インピーダンス整合がよく取れていると言える. 従って、反射係数を確 認するときは, 作成した LC 共振器回路に並列接続となるよう 50 Ωの負荷抵抗を接続する 必要がある(Figure 2.12 参照). これにより、性能の良い共振回路であれば末端の負荷抵抗 までほぼ損失のない電力伝送が可能となる.

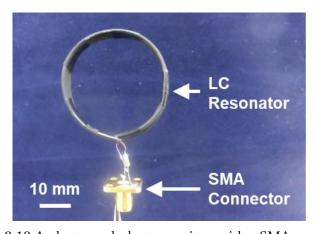


Figure 2.13 A photograph the transmitter with a SMA connector.

以上を踏まえたうえで、ネットワークアナライザによる共振器の計測を行った. トランス ミッターおよびレシーバーの反射係数 ($S_{11},\ S_{22}$) をデシベル表示したものを Figure 2.14 に 示す. (a)トランスミッター側共振器の反射特性に関して,点線でプロットされたラインは 50 Ωの負荷抵抗が接続された状態での反射係数を表している. また, 実線でプロットされ たラインは LC 共振器のみの反射係数である.この図より,共振周波数である 13.56 MHz 付近において、50 Ωの負荷抵抗が接続された状態では、より大きなマイナス値が得られて いることが分かる。これは、ネットワークアナライザで発生した信号が、同軸ケーブル、 SMA コネクタ, 共振器を介して負荷抵抗まで効率良く伝送されていることを表す. また, 比較としてプロットした実線は共振器のみの反射特性であり、50 Ωの負荷抵抗が接続され ている場合と比べ反射係数が 0 dB に近づいている様子が見て取れる.これは,共振器内に エネルギーを消費する抵抗成分がないためであり、理想的な共振器であればこの値が極め て 0 dB に近くなる. 次に、(b)レシーバー側共振器の反射特性に関して解説を行う. レシー バーの反射特性では,50 Ωの負荷抵抗を共振器側に接続した場合としなかった場合におい て、反射係数がほとんど変わらなかった、これは、発振器から伝送された信号が負荷抵抗の 有無に関わらずコイル内の寄生抵抗で消費されたためである. 言い換えれば, コイル内に十 分なエネルギーを保持できないために,外部負荷を接続しても電力を取り出せないことを 意味する.これは共振器のインピーダンスダンス特性を確認することで容易に理解できる. Figure 2.15 に各共振器のインピーダンス特性を示す. Figure 2.14 同様,点線は 50 Ω の負 荷抵抗ありを示し,実線は負荷抵抗なしを示す.Figure 2.15a の実線より,トランスミッタ ー側共振器における共振時のインピーダンス実部成分は 132 Ωを示しており, コイル内に 保持できるエネルギーが十分であることが窺える. また, 50 Ωの負荷抵抗が接続された場 合(点線)では,インピーダンス実部成分が約 37 Ωを示しているため,50 Ω系であるネ ットワークアナライザ、同軸ケーブル、SMA コネクタに対してほとんど反射を起こしてい ないと言える. 即ち, 発振器から共振器の末端に接続された負荷抵抗まで, インピーダンス 整合が十分に保たれている状態である. 一方. レシーバー側共振器については, Figure 2.15b より、共振周波数である 13.56 MHz 上でインピーダンス実部成分が 16 Ω程度しかないこ とが分かる. 従って、この共振器に並列の負荷抵抗 (50Ω) を接続したとしても、合成抵 抗は 50 Ωに近似しない. これは, スミスチャートにおけるインピーダンス特性からも確認 することができる(Figure 2.16).もし、共振器が 13.56 MHz で 50 Ωを示す場合、周波数 特性は円の中心を通過するような軌跡を描く. 従って, 50 Ω系において作製した共振器か ら電力を多く抽出したい場合は, 共振時のインピーダンス実部成分が最低 50 Ω以上である り、負荷抵抗(50 Ω)を接続した際に、インピーダンス実部成分が 50Ω に近似される必 要がある.この条件が達成できない場合,ほとんどのエネルギーは共振器を構成するコイル 内で使用されるため効率の良い伝送経路を形成することはできない.共振器の反射係数に ついては, 如何に大きなインピーダンス実部成分を発生させるかが, 効率的な無線電力伝送 の鍵と言える.

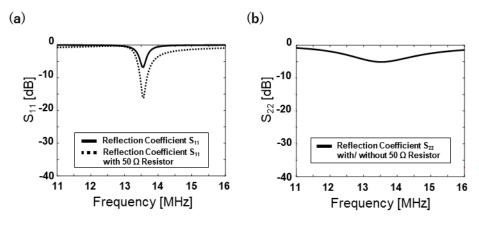


Figure 2.14 Reflection coefficients of (a) the transmitter, and (b) the receiver. Dashed line represents the LC resonator with 50Ω resistance.

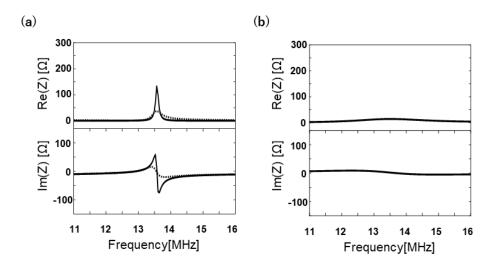


Figure 2.15 Impedance plots of (a) the transmitter, and (b) the receiver. Dashed line represents the LC resonator with 50Ω resistance.

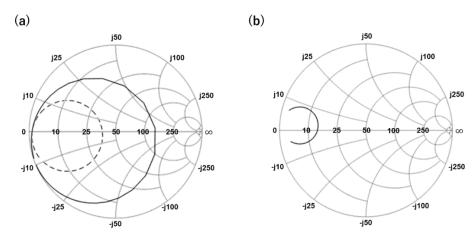


Figure 2.16 Smith charts of (a) the transmitter, and (b) the receiver. Dashed line represents the LC resonator with 50Ω resistance.

2.2.5 ワイヤレス給電システムの構築と評価

次に、電力伝送効率の観点から作製したワイヤレス給電システムを評価する。電力伝送効 率とは、発振器から生成された電力をどの程度の効率で負荷抵抗まで送り届けているかを 評価する指標である.一般的にネットワークアナライザで計測される伝達係数($S_{21},\ S_{12}$) がこれにあたり, デシベル表示で取得される. 今回の実験ではトランスミッター側共振器を ポート 1 へ,レシーバー側共振器をポート 2 へ接続した.このとき共振器に負荷抵抗を挿 入しないことに注意する. 反射係数の測定では、ネットワークアナライザ内の発振器で生成 した電力を消費する部分が必要であったため、負荷抵抗(50Ω)を末端に接続した. しか し、電力伝送効率の計測においてはネットワークアナライザ内で生成された電力が、同軸ケ ーブル (ポート 1) /SMA コネクタ/トランスミッター側共振器/空気中/レシーバー側共振 器/SMA コネクタ/同軸ケーブル(ポート 2)/ネットワークアナライザ内の負荷抵抗という 伝送経路をたどるため,新たに負荷抵抗を接続する必要はない.この場合の伝達係数はS21 と呼ばれ、ポート 1 からポート 2 へ伝送される電力比の平方根を表している. 従って、伝 達係数の利得が高ければ高いほど高効率な伝送システムであると言える.本研究で開発す るスマートコンタクトレンズは眼球表面への装着を前提としており、眼鏡フレームからス マートコンタクトレンズまでの距離は 10 mm と定義している. 項(2.1.3)でも述べたが, 電磁波は周波数帯域によっては誘電体である生体組織に熱作用を及ぼすことが明らかとな っている. よって、本項ではスマートコンタクトレンズ側に誘電体を置いた場合と空気中で の無線電力伝送を実施し,電力伝送効率の変化を確認した.計測実験の様子を Figure 2.17 に示す. 本実験では, 人の眼球サイズに近い豚の眼球を県内の屠殺場で購入し, 誘電体サン プルとした. 電力伝送効率の計測結果を Figure 2.18 に示す. これより, 共振周波数である $13.56 \, \text{MHz} \, 付近において伝達係数(<math>S_{21}$)の利得が増加していることが分かる.ここで,-10dB は電力伝送効率($\eta = |S_{21}|^2 \times 100$ [%])で表すと 10 %であることから,トランスミッ ター側から送信されたエネルギーのうち 10 %がレシーバー側で受信されたと言える. さら に、この 10 %の電力伝送効率は共振周波数付近でのみ確認することが出来るため、それ以 外の周波数帯域ではエネルギーが伝わりづらいと考えることができる. このように, 磁界共 鳴方式を適用したワイヤレス給電では限定された周波数帯域でのみ無線電力伝送が可能と なることが分かる.ここで,Figure 2.18 の赤色線は空気中における計測データであり,黒 色点線は豚の眼球上にレシーバー回路を置いた場合の計測データである.このとき,それぞ れの周波数特性に大きな差異がないことが分かる. これは, 眼球の有無に関わらず無線電力 伝送が安定的に行われていることを示し、生体組織における熱発生、即ち誘電損失がほとん どないことを意味する. この理由として, 今回作製したワイヤレス給電システムが近傍界に おける結合をメインにしたものであり、空気中を伝搬するエネルギーのほとんどが磁界で 構成されているためだと考察した.以上より、 本実験で作製したワイヤレス給電システムは、 眼球表面でも安定動作が期待できると結論付けた.

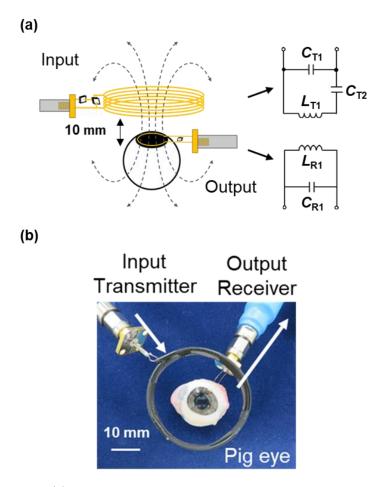


Figure 2.17 (a) A schematic illustration of the experimental setup with equivalent circuits and (b) a photograph of experimental setup.

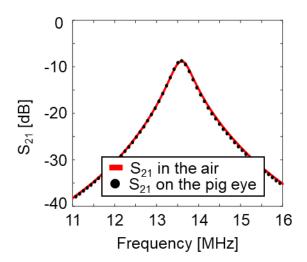


Figure 2.18 Transmission coefficients of our WPT system measured in the air (red) and on a pig eye (black).

2.2.6 ワイヤレス給電システムの数値解析

前項で解説した電力伝送効率は共振器の回路方程式を解くことで導出可能である.本項では、これまでに説明したワイヤレス給電システムについてシミュレーションを利用した数値解析を行う.これにより、電力伝送が行われるメカニズムや、各電子素子が及ぼす影響について理解を深める.まずは、Figure 2.10で示した無線電力伝送システムを簡易的に表現するため等価回路への変換を行う (Figure 2.19).

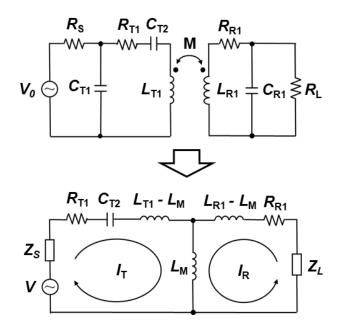


Figure 2.19 The circuit transformation of our WPT system.

まず、テブナンの定理を用いることで、電力源側の発振器(V_0)とソース抵抗(R_S)、およびトランスミッター側共振器の並列キャパシタ(C_{T1})は直列回路に変換することができ、交流電源(V)と電源側インピーダンス(Z_S)は以下のように表現可能である.

$$\begin{cases} V = \frac{\frac{1}{j\omega C_{T1}}}{R_{S} + \frac{1}{j\omega C_{T1}}} V_{0} \\ Z_{S} = \frac{\frac{R_{S}}{j\omega C_{T1}}}{R_{S} + \frac{1}{j\omega C_{T1}}} \end{cases}$$
(2.8)

次に、オームの法則より、負荷抵抗($R_{\rm L}$)とレシーバー側共振器の並列キャパシタ($C_{\rm R1}$)は以下のようにまとめることが出来る.

$$Z_{\rm L} = \frac{1}{\frac{1}{R_{\rm L}} + j\omega C_{\rm R1}} \tag{2.9}$$

このとき、キルヒホッフの電圧則を適用すると、等価回路から 2 種類の閉回路を抽出することができ、以下の方程式を得る。

$$\begin{cases} V = \left\{ Z_{S} + R_{T1} + \frac{1}{j\omega C_{T2}} + j\omega (L_{T1} - L_{M}) \right\} I_{T} + j\omega L_{M} (I_{T} + I_{R}) \\ 0 = \left\{ Z_{L} + R_{R1} + j\omega (L_{R1} - L_{M}) \right\} I_{R} + j\omega L_{M} (I_{T} + I_{R}) \end{cases}$$
(2.10)

ここで、 I_T は電源側を流れる AC 電流であり、 I_R は負荷側を流れる AC 電流である。また、 R_{T1} 、 R_{R1} はそれぞれトランスミッター側コイルとレシーバー側コイル内に存在する寄生抵抗である。また、 C_{T2} はトランスミッター側に直列接続されたキャパシタであり、 L_{T1} および L_{R1} は、各共振器を構成するコイルの自己インダクタンスである。ここで、 L_M はトランスミッターとレシーバー間における相互インダクタンスを意味する。ここで、式(2.10)を行列表現すると、以下のようになる。

$$\begin{bmatrix} V \\ 0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} Z_{S} + R_{T1} + \frac{1}{j\omega C_{T2}} + j\omega L_{T1} & j\omega L_{M} \\ j\omega L_{M} & Z_{L} + R_{R1} + j\omega L_{R1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} I_{T} \\ I_{R} \end{bmatrix}$$
(2.11)

さらに、上記の方程式を電流 $(I_{\rm T},\ I_{\rm R})$ についてまとめると以下となる.

$$\begin{bmatrix} I_{\rm T} \\ I_{\rm R} \end{bmatrix} = \frac{V}{\left(Z_{\rm S} + R_{\rm T1} + \frac{1}{j\omega C_{\rm T2}} + j\omega L_{\rm T1} \right) (Z_{\rm L} + R_{\rm R1} + j\omega L_{\rm R1}) + \omega^2 L_{\rm M}^2} \begin{bmatrix} Z_{\rm L} + j\omega L_{\rm R1} \\ -j\omega L_{\rm M} \end{bmatrix}$$
(2.12)

ここで、共振点におけるそれぞれの回路特性を考えると、リアクタンス成分が 0 になる. 即ち、以下の関係式を考慮することが出来る.

$$\begin{cases} (\text{Im}[Z_{S}] + \frac{1}{j\omega C_{T2}} + j\omega L_{T1}) = 0\\ (\text{Im}[Z_{L}] + j\omega L_{R1}) = 0 \end{cases}$$
(2.13)

以上の条件より、式(2.13)は以下のように書き換えることが出来る.

$$\begin{bmatrix} I_{\rm T} \\ I_{\rm R} \end{bmatrix} = \frac{V}{({\rm Re}[Z_{\rm S}] + R_{\rm T1})({\rm Re}[Z_{\rm L}] + R_{\rm R1}) + \omega^2 L_{\rm M}^2} \begin{bmatrix} ({\rm Re}[Z_{\rm L}] + R_{\rm R1}) \\ -j\omega L_{\rm M} \end{bmatrix}$$
(2.14)

このとき、電力伝送効率(η)は、電源側から供給される電力(P_{IN})と負荷側で消費される電力(P_{OUT})の比であることから、以下のように式をまとめることが出来る.

$$\eta = \frac{P_{\text{OUT}}}{P_{\text{IN}}} = \frac{I_{\text{R}} \overline{I_{\text{R}}} \text{Re}[Z_{\text{L}}]}{I_{\text{T}} \overline{V}}
= \frac{\omega^2 L_{\text{M}}^2 \text{Re}[Z_{\text{L}}]}{(\text{Re}[Z_{\text{L}}] + R_{\text{R1}}) \{ (\text{Re}[Z_{\text{S}}] + R_{\text{T1}}) (\text{Re}[Z_{\text{L}}] + R_{\text{R1}}) + \omega^2 L_{\text{M}}^2 \}}
= \frac{\text{Re}[Z_{\text{L}}]}{\frac{1}{\omega^2 L_{\text{M}}^2} (\text{Re}[Z_{\text{S}}] + R_{\text{T1}}) (\text{Re}[Z_{\text{L}}] + R_{\text{R1}})^2 + (\text{Re}[Z_{\text{L}}] + R_{\text{R1}})}$$
(2.15)

ここで、相互インダクタンスである L_{M} は、以下のように書き換えることができる.

$$L_{\rm M} = k \sqrt{L_{\rm T1} L_{\rm R1}} \tag{2.16}$$

このとき、結合係数 (k) は、トランスミッターとレシーバーのコイル間の結びつきを表す. ここで、Figure 2.17 のような環境設定を考えた場合、kは伝送距離 (d) を使用することで 以下のように表現することが出来る[12].

$$k = \frac{1}{[1 + 2^{\frac{2}{3}} (d/\sqrt{r_1}r_2)^2]^{\frac{3}{2}}}$$
 (2.17)

このとき、 r_1 および r_2 はそれぞれトランスミッター側コイルとレシーバー側コイルの円半径を表す。また、各コイルのインダクタンスについて長岡係数を用いた表現を行うと以下のようになる[13]。

$$L_{\text{T1 or R1}} = \mu_0 K N^2 \frac{A}{I} \tag{2.18}$$

ここで、 μ_0 、K, N, A, lはそれぞれ透磁率、長岡係数、コイルの巻き数、コイル円の断面積、コイルの高さを意味する。式(2.15)より、電力伝送効率(η)が相互インダクタンスや共振周波数に大きく影響を受けることが分かる。また、相互インダクタンスは式(2.16)より結合係数(k) による影響を強く受けることが見て取れる。さらに、この結合係数はトランスミッターとレシーバー間の伝送距離に影響することが分かる。従って、無線電力伝送システムの伝送効率を大きく作用する要因は伝送距離であると結論付けることが出来る。この電力伝送効率と距離に関する関係性は次項に詳細を記述する。また、式(2.18)より磁界を形成するコイルのインダクタンスが巻き数によって大きく変動することが分る。この巻き数とコイルの性能に関する詳細も次項でまとめるものとする。

2.2.7 ワイヤレス給電システムの改善

ワイヤレス給電システムを評価する際のポイントは、各共振器において如何に電力の減衰を抑え、システム全体として伝送効率を高めるかという点にある。本項では、3つの改善ポイント(共振の尖鋭度、インピーダンス整合、伝送距離)に着目し、高効率な電力伝送システムの構築を目指す。まず、共振の尖鋭度について、磁界共鳴方式ではトランスミッターおよびレシーバーに共振条件を設けており、周波数的なエネルギー損失は少ないと考える。一方で、LC 共振器に回路的な工夫を施すことで、さらなる共振周波数の狭帯域化が可能である。次に、インピーダンス整合に関する改善手法を提案する。項(2.2.4)の計測結果より、レシーバー側共振器の Q 値は非常に小さいことが分かる。これは、共振時のインピーダンス実部成分(Re(Z))が50 Ω以下であり、負荷抵抗を接続してもインピーダンス整合がとれないためである。これを改善する手法として、コイルの巻き数増加を提案する。最後に、システム全体の電力伝送効率を改善する手段について、結合係数を向上させる方法が考えられる。式(2.17)より結合係数はコイル間の伝送距離に大きく依存することが分かるため、伝送距離を短縮することでより大きな相互インダクタンスを得ることができると予想する。以降では、これら具体策について実験データを踏まえた考察を行う。

(1) 共振周波数の狭帯域化

Figure 2.20 に本研究で作製したトランスミッター(LCC 共振器)の反射係数利得を示す. 共振周波数 13.56 MHz でプロットデータを半分に分割したとき, 共振特性が左右対称にならないことが確認できる. これは, 直列に接続したコンデンサが原因であり, 13.56 MHz より低周波数側で利得の鋭さが増していることが分かる. 一般的な LC 共振回路であれば共振点は 1 つであるが, LCC 回路においてはそれぞれのコンデンサに対して共振が発生し, それらが 13.56 MHz でカップリングするよう設計されている. 共振器で受容できるエネルギーは一定であり, それらをいかに効率よく特定の周波数帯域で出力するかという点が性能改善の鍵である. LCC 回路では, この課題に対してエネルギーの通り道, 即ち共振周波数の帯域幅を狭めることで尖鋭度の高い共振器を実現した.

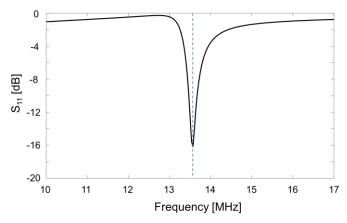


Figure 2.20 Reflection coefficient of the LCC resonant circuit.

(2) コイルの巻き数増加

式(2.16)および式(2.18)より,コイルの巻き数が共振器の自己インダクタンス増加に 繋がることが分かる.前項までのレシーバー側共振器はコンタクトレンズ搭載を目的とし た回路であるため,1 巻きのループコイル(直径 12 mm)により構成されている(Figure 2.12b 参照). これは、トランスミッター側共振器と比較してコイル規模が小さく、回路的 なQ値が低いと言える. そこで、レシーバー側共振器のコイルについて、巻き数を1~3 に 変更することで回路特性を向上させる. Table 2.4 に作製する共振器のパラメータを示す. 各コイルの巻き数は 1~3 巻きであり、各巻き数で発するインダクタンスに対して適当なキ ャパシタを付加することで 13.56 MHz の共振周波数を示すよう共振器を作製した. Figure 2.21 に作製した共振器の外観図と等価回路を示す. また, これらの反射係数 (S_{22}) の利得 (黒色実線)および,トランスミッターからレシーバーまでの伝達係数(S_{21})の利得(赤 色実線)を Figure 2.22 に示す.この図よりコイルの巻き数増加に伴い,伝達係数の利得が 増加することが分かる:-10.67 dB(1巻き),-6.94 dB(2巻き),-4.84 dB(3巻き).これ は、レシーバー側共振器の反射係数が向上したためである.ここで,1 巻き共振器と 2 巻き 共振器に関しては,50Ωの負荷抵抗なしで反射係数を測定した.これは,項(2.2.4)で解説 したように共振時のインピーダンス実部成分が 50 Ω以下であることから、外部負荷抵抗 (50Ω) を接続したとしても合成抵抗が 50Ω に近似しないためである.一方で、3 巻きコ イルにおいては、 $50~\Omega$ の負荷抵抗を接続した際の反射係数(黒色点線)が $-24~\mathrm{dB}$ を示して おり,LC 共振器で受信したエネルギーが効果的に負荷抵抗で消費できている.Figure 2.23 は,各レシーバー側共振器の入力インピーダンスとその拡大図であり.(a)の1巻き(b)の2 巻きを利用したレシーバー側共振器に関しては,共振周波数におけるインピーダンス実部 成分が 50 Ω以下に留まっているに対して, (c)の 3 巻き共振器ではインピーダンス実部成 分は 270 Ωまで増大している.また,50 Ωの負荷抵抗を接続した場合には,インピーダン ス実部成分が 44 Ωを示すことから, 50 Ω系に対して十分なインピーダンス整合が確保で きていると言える. 以上より、コイルの巻き数増加によってレシーバー側共振器の反射特性 を向上させることに成功した.

しかしながら、2~3 巻きコイルを用いた共振器を溶液中で計測した際、コイル間に発生した容量成分により、入力インピーダンスの実部成分が変動することが分かった。これは、溶液に含まれるイオン濃度やコイル間の溶液量によって変動するため、眼球表面での使用を想定した場合、レシーバー側共振器の反射特性が一意に決定しないという問題を孕んでいる。レシーバー側共振器の入力インピーダンス実部成分は電力伝送効率に大きな影響を与えることは既に分かっているため、溶液によって回路特性が変動する 2~3 巻きの共振器はコンタクレンズ型デバイスには採用すべきではないと判断した。従って、コイルの巻き数増加により電力伝送効率を向上させることができたが、以降の実証実験では、溶液中での安定動作を可能とする 1 巻きの共振器をレシーバーとして採用した。

	• •		
	Receiver 1	Receiver 2	Receiver 3
Material	Gold	Gold	Gold
Wire Diameter	0.1 mm	0.1 mm	0.1 mm
Coil Diameter	12 mm	12 mm	12 mm
Number of turns	1: N _{R1}	2: N _{R2}	3: N _{R3}
Inductance (measured)	34 nH: <i>L</i> _{R1}	97 nH: <i>L</i> _{R2}	210 nH: L _{R3}
Capacitance in parallel	4700 pF: C _{R1}	1500 pF: C _{R2}	680 pF: C _{R3}

Table 2.4 A List of component parameters for various turns receivers

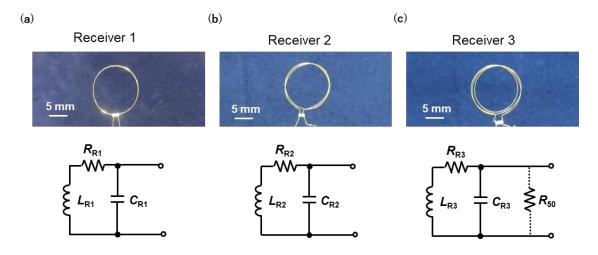


Figure 2.21 Photographs and equivalent circuits of (a) the single turn receiver, (b) the double turn receiver, and (c) the triple turn receiver.

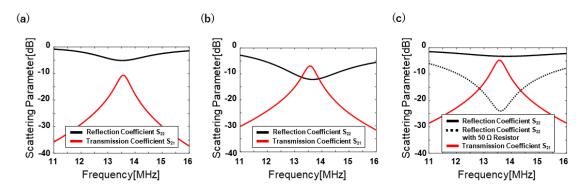


Figure 2.22 Reflection coefficients (black), and transmission coefficients (red) received on (a) single turn, (b) double turn, and (c) triple turn receivers. Dashed line represents the LC resonator with 50 $\,\Omega$ resistance.

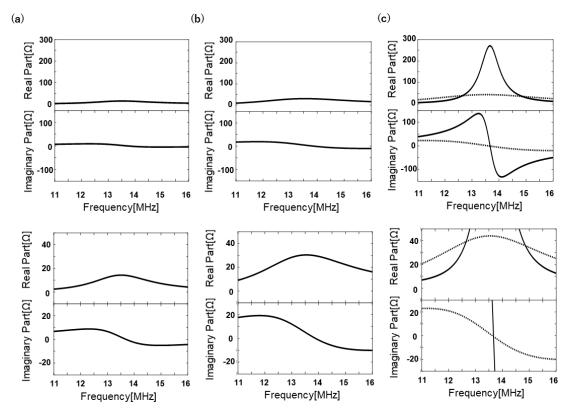


Figure 2.23 Impedance plots (top) and the magnified plots (bottom) for (a) the single turn, (b) the double turn, and (c) the triple turn receivers. Dashed line represents the LC resonator with 50 $\,\Omega$ resistance.

(3) 伝送距離の短縮

式 (2.16) および式 (2.17) より、トランスミッター/レシーバー間の伝送距離が相互インダクタンスに影響することが分かる。これは、磁界共鳴方式が近傍界の磁界結合を主とした伝達を実現していることに起因する。例えば、電波方式のような長距離伝送を得意とする手法に対して、磁界結合が近傍界でのみ利用される磁界共鳴方式では距離に対する結合係数 (k) の減少が著しいためである。このような位置ずれに対する伝送効率の変化は、安定的なワイヤレス給電システムを実装する上で重要な知見となる。よって、ここではデバイスを用いた実験的なアプローチと前項で算出した回路方程式を用いた理論的アプローチによる比較実験を行った。まずは実験的なアプローチとして、Figure 2.17 に示す実験環境を用意した。これまでは伝送距離を $10~\rm mm$ に固定していたが、ここでは伝送距離を $1~\rm mm$ 間隔で $1~\rm 10~\rm mm$ まで変化させながら伝達係数 (S_{21}) を計測した。また、本項で作製した $3~\rm gape 2$ のレシーバー共振器を使って同様の実験を行い、伝送距離変化に対する電力伝送効率の変化をグラフ化した。一方、理論的アプローチによる検証には、項 (2.2.6) で導出したワイヤレス給電システムの電力伝送効率 (η) に関する方程式 (2.15) と、相互インダクタンス、結合係数に関する関係式 (2.16) と (2.17) を利用した。具体的には、これらの公式と各種パラメータを用いて (2.16) と (2.17) を利用した。具体的には、これらの公式と各種パラメータを用いて (2.16) と (2.17) を利用した。具体的には、これらの公式と各種パラメータを用いて (2.17) を利用した。具体的には、これらの公式と各種パラメータを用いて (2.16) と (2.17) を利用した。 (2.16) に (2.16) と (2.17) を利用した。 (2.16) に (2.16) に

値としてグラフ化した.以上,2種類のアプローチによって得られた結果を Figure 2.24 に示す(シミュレーション値は灰色実線,実測値は記号).この図より,伝送距離が1~5 mm である場合,電力伝送効率は安定した値を示すが,伝送距離が5 mm を越えると電力伝送効率が急激に低下する様子が見て取れる.これは主にレシーバー側コイルのサイズに起因していると考えられ,トランスミッターから発生した磁束が急激に鎖交しづらくなる距離であると言える.

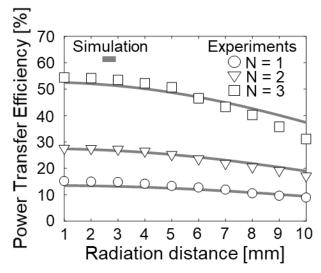


Figure 2.24 Experimental and simulation results of power transfer efficiency as a function of radiation distance between the transmitter and three types of receivers; single turn (circle), double turn (triangle) and triple turn (square).

以上、無線電力伝送システムの性能を向上させる 3 つの改善案について考察を述べた.特に、レシーバー側共振器はコンタクトレンズという限られた領域に実装するため、コイルの巻き数やサイズに制約がある.一方で、トランスミッター側共振器の帯域幅調整や伝送距離短縮といった改善案を施すことで、レシーバー側共振器の低い性能を補うことができる.

2.3 眼球を想定したワイヤレス給電の性能評価

前節では、伝送距離の伸長に伴って電力伝送効率が著しく低下することが分かった。これは主にトランスミッターとレシーバーの位置ずれによって引き起こされる鎖交磁束の減少、即ち結合係数の低下が原因である。この結合係数の低下は共振器間の距離のみならず、3次元的な位置ずれや回転によっても引き起こされる。ここで、スマートコンタクトレンズを眼球に装用する場合、眼球運動によるレシーバー共振器の回転、即ち、トランスミッターとレシーバーの位置ずれを考慮する必要がある。このような日常動作による電力伝送効率の変化を分析することは、本デバイスの実用化を検討する上で重要なデータとなる。本節では、作製したワイヤレス給電システムを眼球モデル上で動作させた場合の電力伝送効率を評価するため、シミュレーションを用いた数値解析およびデバイスによる実証実験を実施する。

2.3.1 回転モデルを用いた数値解析

結合係数は垂直方向距離,水平方向の位置ずれ,回転角によって定義することが出来る.このような共振器の位置ずれに関する分析は、3次元座標を用いたシミュレーションによって実装されている[14].本項では、これを開発したワイヤレス給電システムに適用することで、位置ずれによる結合係数の変化、ひいては電力伝送効率の変化を理論的に解析する. Figure 2.25 に本研究で作製したトランスミッター側共振器と、レシーバー側共振器(1巻き)を配置した3次元座標を示す.

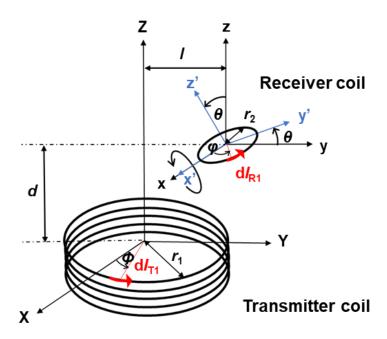


Figure 2.25 Three-dimensional alignment of our WPT system composed of the transmitter and the receiver.

このとき、結合係数 (k) は以下の式で表現可能である [15].

$$k = a_1 \cdot \oint_{I_{\text{TX}}} \oint_{I_{\text{RX}}} \frac{a_2 + a_3 \cos \theta}{\sqrt{a_4 + a_5 \cos \theta + a_6 \sin \theta}} d\phi \, d\phi$$

$$\begin{cases} a_{1} = \frac{N_{\text{TX}}N_{\text{RX}}\mu_{0}}{4\pi\sqrt{L_{\text{TX}}L_{\text{RX}}}} \\ a_{2} = r_{1}r_{2}\sin\phi\sin\varphi \\ a_{3} = r_{1}r_{2}\cos\phi\cos\varphi \\ a_{4} = r_{1}^{2} + r_{2}^{2} + d^{2} + l^{2} - 2r_{1}l\sin\phi - 2r_{1}r_{2}\cos\phi\cos\varphi \\ a_{5} = 2r_{2}l\sin\varphi - 2r_{1}r_{2}\sin\phi\sin\varphi \\ a_{6} = 2r_{2}d\sin\varphi \end{cases}$$
(2.19)

 $N_{\text{TX}} \geq N_{\text{RX}}$ はトランスミッターとレシーバーのコイル巻き数を表し、 $L_{\text{TX}} \geq L_{\text{RX}}$ は各コイルの自己インダクタンス、 μ_0 は透磁率を意味する。また、 $r_1 \geq r_2$ はそれぞれトランスミッターコイルとレシーバーコイルの半径である。ここで、3次元座標への投影を考えた場合、トランスミッターとレシーバーの相対的位置関係は、垂直距離(d)、水平距離(l)、傾斜角(θ)によって決定する。また、無限小の変位ベクトル dl_{TX} 、 dl_{RX} を計算するために、回転角 ϕ 、 ϕ ($0 \leq \phi$, $\phi \leq 2\pi$)を用いたパラメトリック方程式を利用した。式(2.19)より、結合係数は各位置変化を表す可変パラメータ(d, l, d) により定義されることが分かる。Figure 2.26 に各変位パラメータを変更した時の結合係数の変動を示す。(a)では共振器間の距離に比例した結合係数の減少を確認することができる。(b)では水平方向の位置ずれが結合係数の減少に繋がっていることを確認できるが、他の変位パラメータと比較すれば、それほど大きな影響を及ぼしていないと言える。一方、(c)の系射角変動に関する結合係数の減少は比較的大きいことが分かる。このシミュレーション結果より、少なくとも本研究で作製した無線電力伝送システムは垂直方向の位置ずれとレシーバー側コイルの回転によってその電力伝送効率を著しく低下させることが分かった。

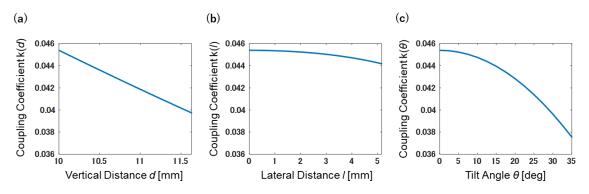


Figure 2.26 Changes of coupling coefficient as a function of various displacement parameters; (a) vertical distance, (b) lateral distance and (c) tilt angle.

前述のとおり、位置ずれや回転によって引き起こされる結合係数の変化は変位パラメータにより異なり、回転を主体とした眼球運動においても電力伝送効率が低下することが予想される。よってここからは、項(2.2.6)で導出した電力伝送効率に関する式(2.15)および結合係数と 3 次元的位置ずれの関係性を表す式(2.19)を組み合わせることで人の眼球運動をモデル化し、トランスミッター/レシーバー間の電力伝送効率の変化を分析する。一般的に、日常生活における左右方向への眼球回転運動は約 15 度であり、最高で 35 度まで回転可能である。また、上下方向への眼球回転運動に関しては、日常の可動範囲が約 15 度であり、上方向への最高回転角は 25 度、下方向への最高回転角は 30 度とされている[16]。これらの眼球運動に関する条件を 3 次元座標における垂直距離(d)および水平距離(l)に適用した場合、式(2.20)のような関係性を見出すことができる。これは、三次元的な位置ずれ(d,l)が眼球の回転角(α)に依存することを表しており、 $d_{\rm init}$ 、 $l_{\rm init}$ は初期位置を、 r_3 は眼球の半径を示す。このような関係式を視覚化した図が Figure 2.27 である。

$$\begin{cases} d = d_{\text{init}} + r_3 (1 - \cos \alpha) \\ l = l_{\text{init}} + r_3 \sin \alpha \end{cases}$$
 (2.20)

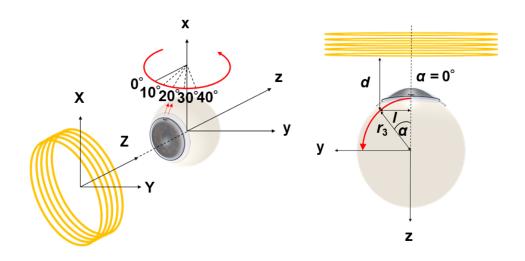


Figure 2.27 Schematic illustration of an eye rotation model with our WPT system.

ここで、式(2.20)を式(2.19)に代入することで、結合係数(k)が眼球の回転角(α)に よって定義可能となる. 以上より、眼球回転モデルとワイヤレス給電システムを統合するこ とに成功した.まず、統合されたシステムモデルを用いて、眼球を0度から35度まで回転 させた場合の垂直距離 (d) と水平距離 (l) の変化を示す (Figure 2.28). (a) より、眼球が 回転するにつれトランスミッター/レシーバー間の垂直距離が非線形的に、最高 2 mm 広が ることが分かる. 一方, (b)の水平方向に関する位置ずれは最高で 6.5 mm 変化することが 分かる.次に、これまでに作製した眼球モデルと式(2.15)を組み合わせて、眼球回転運動 に伴う電力伝送効率の変化をシミュレーションした結果を示す(Figure 2.29). この図より, 眼球上のレシーバー側共振器がトランスミッター側共振器に対して回転するにつれ,電力 伝送効率が低下する様子が見て取れる.特に,15~35 度にかけては下がり幅が顕著に増加 しており、急激な給電効率の低下を招くことが予想される.ここで、上記のシミュレーショ ン結果を実験的に検証するため、Figure 2.30 に示す回転装置を作製した. これは、眼球回 転運動を模した実験器具であり,回転棒の先に取り付けらえた PDMS モールドが棒の回転 に追従する仕組みとなっている. また, 電力伝送効率の測定にはネットワークアナライザを 使用した. Figure 2.29 の実験値(赤色点)は、この実験器具を使用して得たデータである. これらの実験結果より,本章で作製したワイヤレス給電システムを眼球で使用した場合,回 転角が 15~35 度に変化するにつれ,急峻な電力伝送効率の低下を招くことが分かった.次 項では、眼球回転モデルを用いて算出された電力伝送効率の変化を視覚的に確認する。

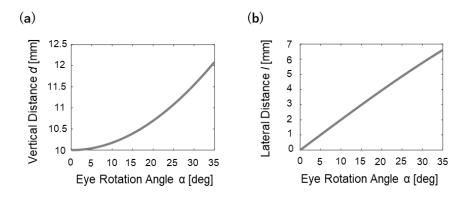


Figure 2.28 Displacement of WPT system as a function of eye rotation angle.

(a) the vertical distance and (b) the lateral distance.

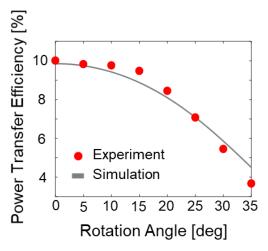


Figure 2.29 Experimental (red) and simulation (gray) results of power transfer efficiency changes as a function of eye rotation angle.

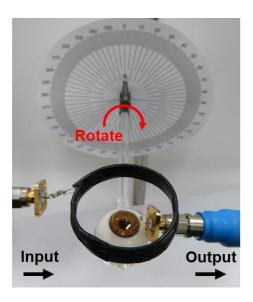


Figure 2.30 A photograph of the experimental eye rotation model.

2.3.2 LED 点灯システムへの応用

前項で測定した眼球運動に伴う電力伝送効率の変化を視覚的に確認するため,本項では レシーバー側共振器の負荷抵抗部分に LED 点灯回路を組み込むことで, ワイヤレス給電型 の LED 点灯デバイスを作製した. Figure 2.31 にワイヤレス給電システムと LED 点灯素子 の等価回路図を示す. 基本的な電力の流れとしては, 発振器で生成された電力がトランスミ ッター側共振器を経由して, 高周波磁界となってレシーバー側共振器で受信される. その後, レシーバー側共振器に並列接続された整流回路が受信した交流電圧を直流に変換し、LED の両端へ印加する. これにより、ワイヤレスな LED 点灯が可能となる. Figure 2.32 に整流 回路を通過する前と後の電圧を示す.これらはオシロスコープによって計測された信号で あり、青色実線は交流電圧、赤色実線は直流電圧を意味する. ここで、レシーバー側共振器 に 4 Vm の交流電圧が印加された場合、整流後の直流電圧が約 1.8 V の電圧値を示すことが 分かる. 今回整流に使用したのは, 短波整流回路でありショットキーバリアダイオードと平 滑化コンデンサ($C_S=47\,\mathrm{nF}$)によりで実現可能である.Figure 2.33 に作製したレシーバー 側共振器と整流回路, LED を搭載したコンタクトレンズの写真を示す. 次節で詳細を述べ るが、レシーバー側共振器の構成要素であるコイルは電気化学的な接着技術を応用するこ とでソフトコンタクトレンズとの一体化が可能である. 最後に、このコンタクトレンズ型 LED 点灯デバイスと発振器に接続されたトランスミッター側共振器を配置し、ワイヤレス 給電を実現した. このとき, 入力側であるトランスミッターには, ファンクションジェネレ ータを用いて 40 Vpp の交流信号 (13.56 MHz) が印加され、約 10 %の電力伝送効率でレシ ーバー側共振器にて給電が行われた. Figure 2.34 は, 無線電力伝送システムによる赤色 LED の点灯実験写真であり、プラスチック製のドールアイ上、および豚の眼球上でのワイヤレス 給電が可能であることを示している.

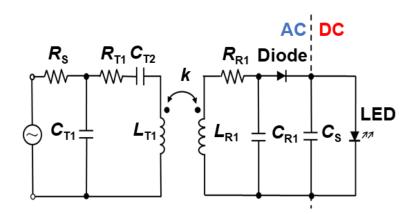


Figure 2.31 A circuit diagram of our WPT system used for LED lighting application.

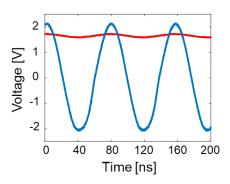


Figure 2.32 AC (blue) to DC (red) conversion with the half-wave rectifier.

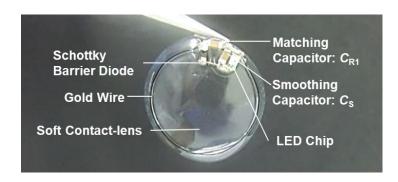


Figure 2.33 A photograph of our soft contact lens device consisting of the LC resonator, the rectifier, and a LED chip.

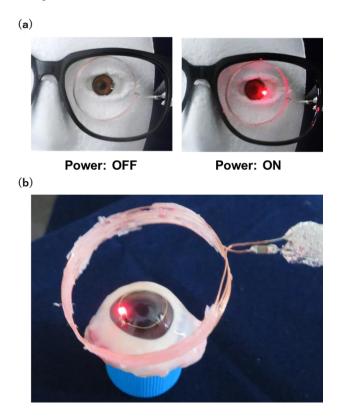


Figure 2.34 Experimental photographs of wireless powering and LED lighting.

(a) wireless powering on a doll eye, (b) wireless powering on a pig eye.

次に前節で議論した、眼球回転運動に伴う電力伝送効率の変化を、LED 点灯デバイスを用いることで視覚的に確認する。Figure 2.30 で紹介した眼球回転装置にコンタクトレンズ型 LED 点灯デバイスを設置し、約 10 mm の伝送距離を保ったままトランスミッター側共振器を配置した。その後、ワイヤレス給電を開始し、眼球モデル 5 度ずつ回転させた。このとき、ワイヤレス給電によって発光した LED の輝度がどれだけ低下するのかを確認した(Figure 2.35)。この実験から、回転角が 5~15 度における範囲では、LED の発光が安定しているのに対して、20~30 度にかけては LED の輝度が著しく低下することが分かった。これは、Figure 2.29 で検証した実験結果と一致しており、回転角が 15 度以上になると電力伝送効率が著しく低下することを表している。このように、ワイヤレス給電システムを動的環境下に適用する場合、トランスミッター/レシーバー間の位置ずれは避けて通れないポイントである。とりわけ、安定した電源確保を必要とするシステムにおいては、位置ずれによる電力伝送効率の変化を事前に分析しておく必要がある。

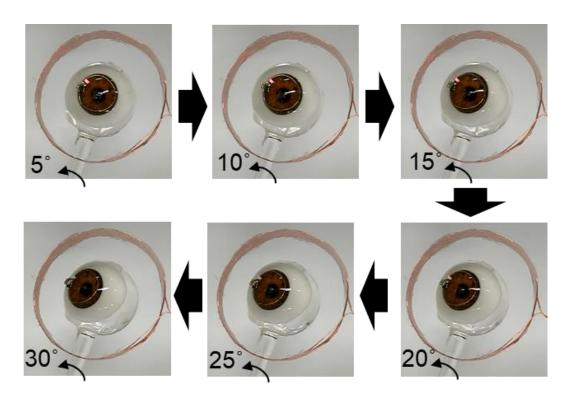


Figure 2.35 Changes of the LED lighting intensity as rotating an eye model.

2.4 導電性高分子を利用した電解重合による異種材料の接着

スマートコンタクトレンズの開発における課題の1つに、コンタクトレンズと電子回路 といった異種材料の統合が挙げられる. これは、開発したウェアラブル・デバイスを生体実 験や臨床応用, ひいては製品開発にまでつなげるための重要なプロセスである. 前節までに 作製したレシーバー共振回路は金線や、チップ部品といった比較的硬い、剛性をもった素材 により構成されている. これらをコンタクトレンズのような柔らかい素材と統合させ, さら に生体適合性を確保するためには特殊なアプローチが必要となる. 例えば, ハードコンタク トレンズ表面にパターン回路を生成するドライリソグラフィ技術や、作製した回路を 2 つ のハードコンタクトレンズで挟み込むサンドウィッチ構造が提案されている[17]. これは, ハードコンタクトレンズの剛性を考えたとき、開発者にとって表面処理や取り扱いが容易 であるためである.一方で、角膜へのフィット感や含水率という観点では、ハイドロゲルで 生成されたソフトコンタクトレンズの使用が好まれる. このような要求を満たすため, ソフ トコンタクトレンズの原料を鋳型に流し、硬化させるキャスト・モールディング手法が提案 されている[18-20]. 一方で、コンタクトレンズの鋳型作製には、旋盤加工や眼球との適合 性検査といったステップを踏む必要があり, 資金的な課題が付きまとう. そこで, 本研究で は市販のソフトコンタクトレンズに電子回路を接着させるという新たなコンセプトのもと、 スマートコンタクトレンズと給電素子の統合を行った.具体的な接着手法として応用した のは, 先行研究として開発が進んでいた導電性高分子の電解重合技術である[21]. 本節では, 導電性高分子と電解重合による基礎知識を述べた上で,ソフトコンタクトレンズ表面への 回路接着とその評価を行う.

2.4.1 導電性高分子

導電性高分子とは電子伝導性を示す高分子の総称であり、1977年に発表されたポリアセチレン膜の合成と高伝導性に関する研究報告を皮切りに、飛躍的な発展を遂げた[22].また、2000年度のノーベル化学賞が白川英樹、Alan G. MacDiarmid、Alan J. Heeger に授与されたことにより、学術分野以外でも応用研究が進められてきた。特に、 π 共役系高分子の構造を制御した π 共役系オリゴマーは、導電性材料としてのみならず、有機半導体材料としてエレクトロニクス分野での応用が注目されている。また、導電性高分子は絶縁体から半導体の特性を示す一方で、ドーピング操作を施すことで良導体の特性を示すようになる。具体的には、導電性高分子にドーパントと呼ばれる分子を付与することにより、その導電率を変化(絶縁体-半導体-金属などに)させることが可能となる。ドーパントは主に2種類に大別することができ、高分子主鎖の共役系から π 電子を取り出し正孔を形成するアクセプタ型、主鎖の共役系に電子を与えるドナー型がある。アクセプタの場合であれば共役高分子から π 電子が引き抜かれて正の荷電担体(正孔)が形成される。ドナーの場合であれば電子が供給されることにより負の荷電担体が形成される。ドーピングの本質は電荷移動であり、その実現

には化学的ドーピングや電位の印加による電気化学的ドーピング,または試薬の添加による注入法などがある。本節で紹介する電気化学重合は,電気化学的ドーピングを基盤としており,陰イオンをドープしたい場合は導電性高分子を正に,陽イオンをドープする場合は導電性高分子が負になるように電位を印加する必要がある。電解重合法で得られる導電性高分子は,電解酸化重合の場合であれば支持電解質の陰イオンを,電解還元重合の場合であれば支持電解質の陽イオンを重合過程で取り込むことになる。このような導電性高分子は,強靭で柔軟性も有するため,フレキシブルな電子デバイス作製において都合の良い材料であると言える。さらに,導電性高分子の代表例であるポリピロール:PPy(Polypyrrole)には高い生体適合性があることが報告されていることからも[23],生体組織に接触するもしくは埋植型のインタフェース応用に期待が高まっている。

2.4.2 電気化学的電解重合法

ポリエチレンジオキシチオフェン: PEDOT (Poly(3,4-ethylenedioxythiophene)) やポリピロール: PPy (Polypyrrole) をはじめとした導電性高分子は、電解重合法によって成膜可能であり、モノマーと支持電解質を含む重合溶液に電極を浸し、電圧を印加することで電極表面にて導電性高分子の重合が行われる. ここで、支持電解質は電解液に電気伝導性を付与する目的以外にも、導電性高分子の重合過程でドーパントとして取り込まれ、導電性高分子の電気伝導度を高める役割を担っている. この電解重合法では、電極領域にのみ導電性高分子を形成することができるため、電解液の組成や重合電位などのパラメータ設定により、膜厚や導電率といった物性を制御できるという利点がある[24]. 本研究では、この電解重合法を応用し、ソフトコンタクトレンズ表面に給電素子(レシーバー側共振器)を接着する (Figure 2.36). また、重合対象である導電性高分子には PEDOT を使用した.

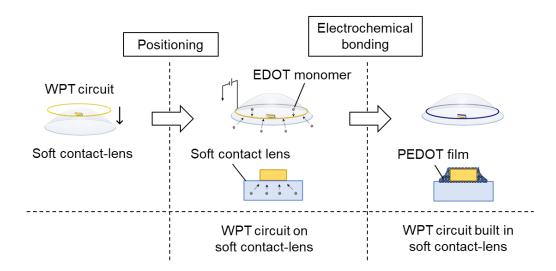


Figure 2.36 Schematic illustration of the electrochemical (EC) bonding process.

以下に具体的な重合工程を示す.

- (1) 電解重合を行うための溶液を用意する. $50 \, \text{mM}$ の EDOT モノマーと $100 \, \text{mM}$ のドーパント LiClO_4 で構成された電解液を配合し、マグネチックスターラーを用いて数時間攪拌させる.
- (2) 市販のソフトコンタクトレンズを(1)で作製した電解液に浸し、溶液温度を 4° Cに保ちながら 1 日保管する.
- (3) EODT モノマーと電解液を吸い込んだソフトコンタクトレンズ表面に、金線(レシーバー側共振器のループコイル)を密着させる。また、金線はポテンショスタットの作用電極 WE に接続し、対極 CE には白金電極を使用する(Figure 2.37)。この状態で参照電極 RE(Ag/AgCl)に対して 1.0 V の電圧を印加すると EDOT モノマーの重合が進み、結果として金線表面に PEDOT 膜が成膜される。このとき、PEDOT 膜は黒色の表面色を示す(Figure 2.38 参照)。
- (4) 作用電極である金線表面に導電性高分子である PEDOT が成膜されたことを確認した後で、金線/コンタクトレンズを重合用溶液から取り出し、PBS $(0.1\,\mathrm{M},\,\mathrm{pH}=7.0)$ にて保管する (Figure 2.39).

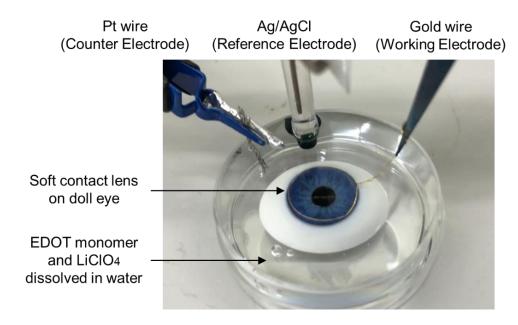


Figure 2.37 An experimental setup for EC bonding.

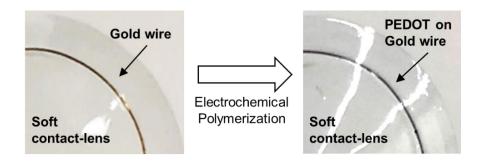


Figure 2.38 Photographs of a gold wire attached on a soft contact lens before (left) and after (right) EC bonding.

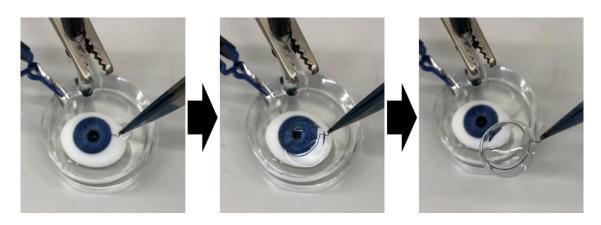


Figure 2.39 A photographs of a gold wire bonded on a soft contact lens.

次に、電解重合による接着メカニズムについて解説する. ソフトコンタクトレンズと電極である金線が密着している状態で電圧を印加すると金線表面で導電性高分子の形成がはじまる. このとき、導電性高分子を成形する EDOT モノマーおよび電解液は、ハイドロゲル素材のソフトコンタクトレンズ中に取り込まれているため、素材となる EDOT モノマーとドーパントである電解質がコンタクトレンズ内部からも供給される(Figure 2.36). これにより、金線表面で生成される導電性高分子膜は、コンタクトレンズ内部(浅い部分)へも成長することになる. これは、ソフトコンタクトレンズの素材がポリマーベースであることに起因している. 導電性高分子膜の成長を確認するため、重合後のソフトコンタクトレンズをカットし、光学顕微鏡で断面を観察した(Figure 2.40). この図より、PEDOT 膜が金線周りに形成されていることが分かる. また、コンタクトレンズ内に成長した導電性高分子はソフトコンタクトレンズ表面を変形させながら、金線に密着している様子(赤色の点線部分)を確認することができるため、形成された導電性高分子が比較的強固な接着剤として機能していると言える. この導電性高分子の膜厚は電解重合で使用される電荷の総数に依存しており、流れる電荷量が多いほど重合される PEDOT の体積が増加する. これは、クーロンメーターによって調整可能である. 一方、電気化学重合により接着されたレシーバー側共

振器は、金線(ループコイル)と電子素子(チップコンデンサ)により構成されており、各素子の接合には Ag ペーストが使用されている。よって、電解重合における Ag の酸化を防ぐため、本実験では電気化学重合前に Ag ペーストで固定された接続面を市販の溶液接着剤で覆い、イオンの絶縁を図った。その結果、回路の電気特性を維持したまま給電素子をソフトコンタクトレンズに接着させることに成功した。

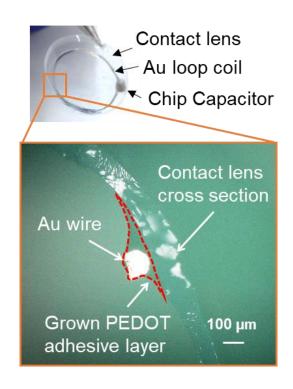


Figure 2.40 A cross section image of a soft contact lens with an EC bonded gold wire.

2.4.3 接着手法の評価

本項では、電解重合を利用した接着手法が給電素子に影響を及ぼさないかを定量的に検証する。前節で解説したように無線電力伝送において重要となる指標は共振器のインピーダンス特性である。ソフトコンタクトレンズに接着するレシーバー側共振器は、予め設計したインピーダンス特性を有しており、これが電解重合の前後で変化しないことが望まれる。特に、本実験ではコイル素材である金線の表面に良導体性質を示す導電性高分子が成膜されるため、インピーダンス特性の変化を明らかにする必要性がある。そこで、レシーバー側共振器をソフトコンタクトレンズ上に接着する前後において、入力インピーダンスを計測した(Figure 2.41)。灰色実線は重合前、赤色点線は重合後を意味する。このとき、インピーダンスの実部と虚部に大きな変化が見られなかったことから、金線への導電性高分子付着による共振回路への影響はほとんどないと結論づけた。一方で、もしループコイルの巻き数が増加した場合、コイル間に存在する浮遊容量は導電性高分子膜や水分量によって変化することが予想され[25]、結果として回路の周波数特性が変動する可能性がある。

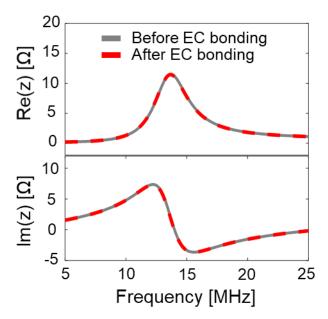


Figure 2.41 Impedance plots of the LC resonator consisting of a chip capacitor and a gold wire before (gray) and after (red) EC bonding.

電解重合法によって成膜された導電性高分子は金線との強い結合を示したが、一方で導 電性高分子の電解重合後、ソフトコンタクトレンズの形状が変化してしまうという課題が あった. 具体的には, 円形の断面図を有する金線において, 導電性高分子の成膜過程でソフ トコンタクトレンズが湾曲することで、接着面において常に弾性力が働いている状態が確 認された. この状態で, コンタクトレンズの水分減少による収縮や外部からの衝撃が加わる と、接着部分が簡単に剥がれてしまうことが分かった。そこで、これらを改善するためにソ フトコンタクトレンズの表面に対して水平になるような金線を用意した. これまで使用し ていた金線は直径 0.1 mm の円形であったが、これをプレス機によって押しつぶすことで約 0.04 mm 程度の厚みをもつ金線を得ることができた.その後,同様の電解重合プロセスに より金線とソフトコンタクトレンズの接着を行った. これにより得られたサンプルの断面 図を Figure 2.42 に示す.この図より,Figure 2.40 に示した円形の金線に比べ,比較的大き な表面積を接着面として利用できていることが分かる. また, ソフトコンタクトレンズ表面 における形状変化は発生しなかった. 以上より, 電解重合によるソフトコンタクトレンズの 変形を回避することができ,かつ強固な接着強度を実現することに成功した.ここで,一般 的に接着強度を評価する手法としては、スクラッチ法や引張り試験が挙げられる. しかしな がら、電極基盤となるソフトコンタクトレンズは脆弱なポリマー素材であるため、これらの 評価手法が使えないと判断した. 従って, 接着強度を定性的に評価するために指による形状 変化を実施した(Figure 2.43).この結果,金線はソフトコンタクトレンズ表面にしかっり と固定されており、接着面の剥離は確認されなかった. ただし、弾性限度を超えた力を加え ると金線自体の形状が変形し、結果としてコンタクトレンズのベースカーブが変形するこ とが分かった.

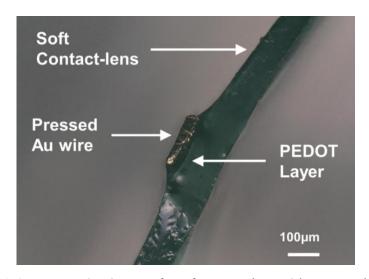


Figure 2.42 A cross section image of a soft contact lens with a pressed gold wire.

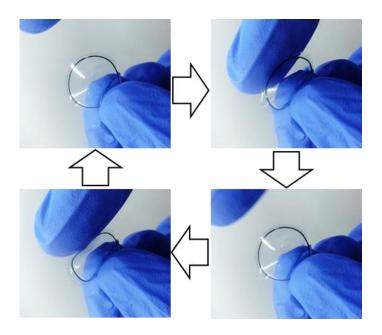


Figure 2.43 Deformation tests of an EC bonded gold wire/a soft contact lens.

接着基盤として使用したソフトコンタクトレンズについて、その市販製品は数多く生産されており、含水率やイオン透過性の観点から4種類に分類されている。ここで、各種ソフトコンタクトレンズに対して、本研究で使用する接着法が有効であるかを検証した。Figure 2.44 に9種類の市販製品を用いた実験結果を示す。結果としてすべてのソフトコンタクトレンズ製品に金線が接着可能であった。しかしながら、グループIVの製品については3種類中2つのソフトコンタクトレンズに形状変化が見られ、ベースカーブが維持できないことを確認した。これは、グループIVの製品が高含水率かつイオン透過性が高い素材で構成されていることが原因であり、コンタクトレンズ内において導電性高分子が著しく成長したことで、金線との接着強度が強くなりすぎたためであると考察した。

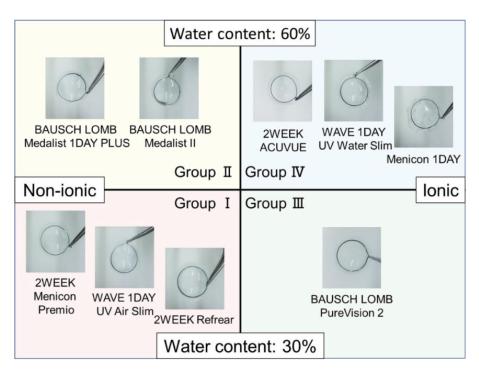


Figure 2.44 Classification of commercially available contact lenses and the photographs of EC bonding results.

次に、コンタクトレンズ型デバイスの実用を見据えた動物実験の結果を示し、接着強度の定性的評価を行う。本実験は山口大学医学部の担当スタッフ監修のもと、専用の動物実験施設で実施された。具体的には、薄膜金線(厚み 0.04 mm)を接着したコンタクトレンズ型デバイスを約 30 分間ウサギの眼球表面に装用し、デバイスの装用感や安定性を確かめた(Figure 2.45)。その結果、ウサギの瞬目に対して、ソフトコンタクトレンズからの金線剥離は観測されなかった。以上より、導電性高分子による金線/コンタクトレンズ間の接着強度は十分であると結論付けた。本来であれば耐久性試験による定量的な接着強度評価が必要であるが、前項で述べた通り、ソフトコンタクトレンズを基盤としたスクラッチ法や引張り試験は実施困難であるため、ここでは実用化に伴う瞬き動作に対してのみ定性的評価を行った。



Figure 2.45 Wearing tests of the soft contact lens device on a rabbit's eye.

2.5 おわりに

本章では、ワイヤレス給電の基盤となる無線電力伝送システムの構築を研究目的と定め、磁界共鳴方式を利用した小型かつ高効率なコンタクトレンズ型給電素子の設計・実装に成功した。また、数値シミュレーションや作製デバイスを用いた評価実験を行うことで、共振周波数の尖鋭化やインピーダンス整合、伝送距離の変化によって電力伝送効率が向上することを示した。また、電解重合法を適用することにより、給電素子とソフトコンタクトレンズという異種材料の接着に成功し、ワイヤレス給電が可能であることを実験的に確かめた。一方、作製したコンタクトレンズ型デバイスは、眼球表面におけるウェット環境での動作を想定したものであるため、誘電体上での性能試験も行った。その結果、ワイヤレス給電時に豚の眼球表面において誘電損失がほとんどないことが確認されたため、13.56 MHz の磁界共鳴結合が生体組織付近において安全であると結論付けた。加えて、眼球運動に即したワイヤレス給電についても実証実験を行い、回転角 15 度以上において電力伝送効率が急激に低下することを明らかにした。

ここで、作成したコンタクトレンズ型デバイスの性能を相対的に評価するために他グループの先行研究を列挙した(Table 2.5). これらは、本研究を開始した 2017 時点で報告されていた研究内容である. 特に、本研究と従来研究との大きな違いはレンズ素材にあり、酸素透過性の高い市販のコンタクレンズに給電素子を統合させた点にある. さらに、動作周波数は発熱特性を鑑みて生体安全性のある 13.56MHz とし、コイルの巻き数は溶液干渉がない1巻きを採用した. このような条件下でも、概ね同等の入力信号で赤色 LED の無線点灯が可能であったことから、本成果は、生体組織上で安定的に駆動する無線給電式デバイスであると言える.

Table 2.5 Performance comparison of wireless powering systems on a contact lens device.

	This Work	[26] (2010)	[27] (2011)	[28] (2012)	[29] (2015)	[30] (2017)
				Anteriors Chicase Benser Readout IC	LED 1cm	Chip
Working Frequency	13.56 MHz	2.4 GHz	1.05 GHz	1.8 GHz	13.56 MHz	920 MHz
Power Transfer Efficiency [%]	10				17.5	
Input power [dBm]	36	25	35	40	17	26.5
Distance [mm]	10	100	100	150	20	10
Lens Material	Commercially available soft contact lens	Polyethylene terephthalate (PET)	Polyethylene terephthalate (PET)	Polyethylene terephthalate (PET)	Parylene	HEMA hydrogel
Number of Turns	1	1	1	1	3	1

2.6 参考文献

- [1] Achraf Ben Amar, Ammar B Kouki, Hung Cao, "Power Approaches for Implantable Medical Devices", *Sensors*, 15(11), 2015.
- [2] T. Zhanga, Z. Lia, W. Houb, Y. Yanga, "Nanomaterials for implantable batteries to power cardiac devices", *Materials Today Nano*, Vol. 9, 2020.
- [3] 太田佑貴(2015), "電磁誘導型非接触電力伝送システムの設計手法に関する研究", 東北大学博士論文.
- [4] Tianjia Sun, Xiang Xie, Guolin Li, Yingke Gu, Xiaomeng Li, Zhihua Wang, "An omnidirectional wireless power receiving IC with 93.6% efficiency CMOS rectifier and Skipping Booster for implantable bio-microsystems", *IEEE Asian Solid-State Circuits Conference*, 2011.
- [5] Dipak L. Sengupta, Tapan K. Sarkar, "Maxwell, Hertz, the Maxwellians, and the early history of electromagnetic waves", *IEEE Antennas and Propagation Magazine*, Vol. 45, Issue 2, 2003.
- [6] Ariel Roguin, "Nikola Tesla: The man behind the magnetic field unit", *Journal of Magnetic Resonance Imaging*, Vol. 19, Issue 3, 2004.
- [7] André Kurs, Aristeidis Karalis, Robert Moffatt, J. D. Joannopoulos, Peter Fisher, Marin Soljacic, "Wireless Power Transfer via Strongly Coupled Magnetic Resonances", Science, Vol. 317, 2007.
- [8] Tanmay Tandon, Prasoon Dhaneswar, Mr. Abhishek Verma, Dr. Anup Mishra, "Wireless Power Transmission Using Resonant Coupling and Induction", *IJERT*, Vol. 2, Issue 11, 2013.
- [9] 唐沢好男, "ワイヤレス電力伝送:その理解の壺", Technical Report YK-008, 2018.
- [10] 庄木祐樹, "ワイヤレス電力伝送の技術動向・課題と実用化に向けた取り組み", *Technical Report of IEICE*, 2010.
- [11] Mehrdad Mehdizadeh(2010), "Microwave/RF applicators and probes: for material heating, sensing, and plasma generation", Elsevier Inc.
- [12] Shu Yuen Ron Hui, Wenxing Zhong, Chi Kwan Lee, "A critical review of recent progress in mid-range wireless power transfer", *IEEE Transactions on Power Electronics*, Vol. 29, Issue 9, 2013.
- [13] H. Nagaoka, "The Inductance Coefficients of Solenoids", *The journal of the College of Science, Imperial University of Tokyo, Japan*, 27, 1909.
- [14] Wei Huang, Hyunchul Ku, "Analysis and Optimization of Wireless Power Transfer Efficiency Considering the Tilt Angle of a Coil", *Journal of Electromagnetic Engineering and Science*, Vol. 18, Issue 1, 2018.

- [15] T. Linlin, Q. Hao, H. Xueliang, C. Weijie, S. Wenhui, "A novel optimization means of transfer efficiency for resonance coupled wireless power transfer", *TELKOMNIKA Indonesian Journal of Electrical Engineering*, 11, 6, 2013.
- [16] U.S. Army Aviation and Missile Command, "Department of Defense Design Criteria Standard: Human Engineering", 2003.
- [17] Zainab T. Ali, Rashmi P. Bijwe, "Google Smart Contact Lens Monitoring Diabetes from Tears", *International Journal of Engineering Science and Computing*, Vol. 6, Issue 3, 2016.
- [18] Guo-Zhen Chen, Ion-Seng Chan, David C.C. Lam, "Capacitive contact lens sonsor for continuous non-invasive intraocular pressure monitoring", *Sensors and Actuators A: Physical*, Vol. 203, 2013.
- [19] Andres Vasquez Quintero, Rik Verplancke, Herbert De Smet, Jan Vanfleteren, "Stretchable Electronic Platform for Soft and Smart Contact Lens Applications", Adv. Mater. Technol., Vol. 2, Issue 8, 2017.
- [20] Andre Childs, Hao Li, Daniella M. Lewittes, Biqin Dong, Wenzhong Liu, Xiao Shu, Cheng Sun, Hao F. Zhang, "Fabricating customized hydrogel contact lens", *Scientific Reports*, 6, 34905, 2016.
- [21] Soichiro Sekine, Yuichiro Ido, Takeo Miyake, Kuniaki Nagamine, Matsuhiko Nishizawa, "Conducting polymer electrodes printed on hydrogel", J. Am. Chem. Soc., Vol. 132, Issue 38, 2010.
- [22] Shirakawa H., Louis E. J., MacDiarmid A. G., Chiang C. K., Heeger A. J., "Synthesis of electrically conducting organic polymers: halogen derivatives of polyacetylene, (CH)x", *J. Chem. Soc., Chem. Commun.*, Issue 16, 1977.
- [23] C.E. Schmidt, V.R. Shastri, J.P. Vacanti, R. Langer, "Stimulation of neurite outgrowth using an electrically conducting polymer", *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, Vol. 94, Issue 17, 1997.
- [24] 関根宗一郎(2011), "バイオ界面の電気化学制御に関する研究", 東北大学大学院工学研究科バイオロボティクス専攻博士学位論文.
- [25] Ignacio Lope, Claudio Carretero, Jesus Acero, "First self-resonant frequency of power induces based on approximated corrected stray capacitances", *IET Power Electron.*, 14, 257-267, 2021.
- [26] Jagdish Pandy, Yu-Te Liao, Andew Lingley, Ramin Mirjalili, Babak Parviz, Brian P. Otis, "A Fully Integrated RF-Powered Contact Lens With a Single Element Display", IEEE Transactions on biomedical circuits and systems, Vol. 4, No. 6, 2010.
- [27] A R Lingley, M Ali, Y Liao, R Mirjalili, MM Klonner, M Sopanen, S Suihkonen, T Shen, B P Otis, H Lipsanen, B A Parviz, "A single-pixel wireless contact lens display", *Journal of micromechanics and microengineering*, 21, 125014, 2011.

- [28] Yu-Te Liao, Huanfen Yao, Andrew Lingley, Babak Parviz, Brian P. Otis, "A 3-μW CMOS Glucose Sensor for Wireless Contact-Lens tear Glucose Monitoring", IEEE *Journal of solid-state circuits*, Vol. 47, No. 1, 2012.
- [29] Young-Joon Kim, Jimin Maeng, Pedro P. Irazoqui, "Eyeglasses-powered, contact lens-like platform with high power transfer efficiency", *Biomed Microdevices*, 17, 75, 2015.
- [30] Jin-Chen Chiou, Shun-His Hsu, Yu-Chieh Huang, Guan-Ting Yeh, Wei-Ting Liou, Cheng-Kai Kuei, "A Wirelessly Powered Smart Contact Lens with Reconfigurable Wide Range and Tunable Sensitivity Sensor readout Circuitry", *Sensors*, 17, 108, 2017.

第3章 ハイブリッド・ウェアラブル電源

3.1 はじめに

第2章で述べたワイヤレス給電は、溶液環境にて安定した電力伝送を可能とする一方で、コンタクトレンズ表面という限定領域においては、レシーバー側コイルのサイズが制約されてしまい電力伝送効率が 10%に留まっていた。このとき、レシーバー側で更なる電力供給を実現するには、トランスミッター側に印加する入力電力を増大させる必要があるが、それは同時に、生体組織への高周波電磁波暴露に繋がる課題を孕んでいる(ICNIRP により生体に与える磁界強度は厳格に規制されている)。そこで本研究では、生体に与える磁界強度を抑制しつつ、高電圧を確保するハイブリッド電源を提案する。これは、ワイヤレス給電システムに新たな発電素子を組み合わせた新しい電源であり、生体という特殊な環境を活かした電源出力の向上を実現する。

本章では、まずバイオデバイスにおける電源の種類とハイブリッド電源の開発動向について概説する。その後、実際に作製したハイブリッド電源について発電性能の観点から評価を行う。最後に、作製した電源を電解重合法にてコンタクトレンズ上に接着し、生体適合性の観点から本デバイスの評価を行った。

3.1.1 バイオデバイスにおける電源の種類と課題

将来が期待される医療用 IoMT 機器は、生体情報の計測のみならず、電気や薬剤投与による治療を可能にし、それらの記録を外部に伝える役割を担う。従って、これらを達成するバイオデバイスは、センサ/スティミュレータ/無線通信ユニット/電源/CPU/メモリといった構成要素で成り立つことが予想される。この中で、電源は全ての電子素子を駆動させるための核であり、包括的なシステムづくりの根幹とも言える。一方で、従来までのハードな(硬く乾いた)電子デバイスと異なり、脆弱な生体組織への装用を見込んだバイオデバイスには、ソフトな(柔らかく湿った)特性を付与する必要があり、メカニカル・マッチングや生体適合性を加味した材料選定が必要となる。さらに、そのような条件を満たした上で、如何にして安定電源を確保するかという問いが、バイオデバイス向け電源の本質的課題である。ここで、現在までに開発が進むバイオデバイス向け電源についてその種類と特長をまとめる。特に、生体組織表面での利用を念頭に置いたデバイスにおいては、身近なエネルギー(化学、生化学、熱、機械、風、太陽、電磁波)から電気エネルギーを創出する発電素子や電気を蓄える蓄電素子が期待されている(Figure 3.1)。

まず、最もなじみのあるリチウムイオン電池は、近年スマートフォンやパソコンといった 身近な電子機器に利用されており、その電力密度は他の電源と比較して非常に大きな値で ある.しかしながら、サイズ的制約や液漏れなどの潜在毒性を有するのも事実である.次に、 高い電力密度と環境親和性の観点から次世代の電池として、近年再注目されている金属空

気電池(Metal-air Battery)について紹介する.金属空気電池は、燃料電池の一種であり、 金属と酸素の反応によって発電が行われる.特に,カソード極の活物質(酸素)を充填して おく必要がないため、小型かつ軽量といった特徴をもつ、また、アノード極に使用されるマ グネシウムや亜鉛は、埋蔵量の観点から環境負荷の少ない素材であり、かつ生体親和性を示 すことも相まって, バイオデバイスへの電源応用が進められている. 電力密度は, 従来まで のリチウムイオン電池 (Li-ion) が 387 [Wh kg⁻¹] に留まるのに対し, 亜鉛空気電池 (Zn-air) は約3倍の1300 [Wh kg-1], マグネシウム空気電池 (Mg-air) では約20倍の6800 [Wh kg-1]という数値を示す[1].加えて、その歴史は古く、1960年代中期には既に埋め込み型デバ イス用電源として開発が進んでいたとされる[2].一方で、アノード極や電解液の耐久性が 2次電池として優れないことや,酸素供給のため密閉機構に適さないことから,大々的な普 及には至らなかった経緯を持つ.しかしながら、本章ではこの特性を上手く利用し、コンタ クトレンズ型デバイスの電源応用を実現した. 他方, これら化学電池と比較して生体から直 接エネルギーを得る発電素子をバイオ燃料電池と呼ぶ.これは,自然界に存在する再生可能 な燃料を使用することから、環境負荷の少ないユビキタス電源として注目が高まっている。 特に、生体内のグルコースやデンプンを用いた酵素電池は、酵素を電極触媒とした電気化学 反応を基盤としており、体内特有の温和条件(20-40℃, pH=7.0)で駆動可能である. また、 反応においては高い選択性を有し、かつ副反応として生成される物質は生分解性を示すた め、生体にとって非常に安全な電源であることが窺える。しかしながら、実用化に向けた課 題も存在し, 安定性や電力密度の最適化が議論の対象とされてる. このように体内の生化学 物質を利用した電源開発が進む中、呼吸や運動といった生体活動から電力を発生させる手 法も数多く提案されている. 例えば、圧電効果や帯電効果、温度変化を利用した PENG (Piezoelectric Nanogenerator), TENG (Triboelectric Nanogenerator), PyG (Pyroelectric Generator) の応用がこれに該当する. しかしながら, これらは, 出力電力の低さがボトル ネックとなっており、特別な電力管理ユニットを要するという課題を残している. 他方、生 体の外にある外部環境からエネルギーを収集するというコンセプトを体現したのが,太陽 光発電: PV (Photovoltaic) やワイヤレス給電技術であり, これらは技術的な成熟度も高く. 安定した電力供給が可能である.

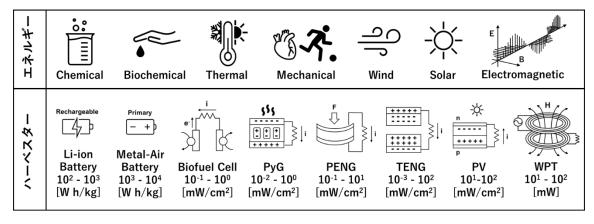


Figure 3.1 The types of energy harvesters and their performance.

3.1.2 ハイブリッド電源の開発動向

近年では上述した各電源に多機能性を持たせる研究が進められており、その目的は以下の4つに大別可能である:①異なる電源同士を組み合わせた電源の高出力化、②電源本体の生体適合化、③電源本体への伸縮性・柔軟性付与によるメカニカル・ミスマッチの改善、④センシング性能を兼ね合わせた電源の高機能化(Figure 3.2)。本項では、これらハイブリッド電源の開発動向について概説する。

前項で述べたユビキタス・エネルギーを利用する電源(バイオ燃料電池、TENG、PENG、PyG)は、単体での自己発電が可能であるが、実用化においてはその発電性能の低さが課題であった。そこで、異なる電源同士を組み合わせることで電源出力を高めるアイデアが提案されている。その例として、マスクに発電素子を搭載することで、吐息に含まれる熱と断続風を電気エネルギーに変換するデバイスの開発が進めれている[3](Figure 3.2a)。これは、PENG、TENG、PyG を組み合わせたハイブリッド電源であり、装用者の吐息から約5 mW(充電容量 $22\,\mu\text{F}$)の電力を生み出すことに成功している。また、太陽光と生体動作から同時に電気エネルギーを取り出すデバイスも実装されており[4](Figure 3.2b)、TENG と PVを利用したファブリック型電源を実装している。これは、ファイバー状のセルを生地に織り込んだ電源であり、軽量かつ柔軟という利点から手軽に身に着けることが出来る。さらに、生地形状における発電性能は非常に高く(平均 $0.5\,\text{mW}$)、携帯電話の充電やデジタル時計の給電が実施例として示されている。このような、異種電源の組み込みによる電源出力の向上例はいくつか報告されており、本研究で提案するハイブリッド電源もここに該当する。

さて、体内や体表でのデバイス使用を鑑みた場合、長期装用を実現させるためには、電源性能だけに留まらない生体組織への適合性が必要不可欠である。特に、意図しない免疫応答や生体組織の損傷は確実に防止しなければならない。そこで近年、体内で物理的に消滅可能なトランジエント・エレクトロニクスが注目を集めている。これは、生体を構成する 26 元素に基づいたモノづくりを目指すものであり、デバイス自体が特定の期間後に生体内で吸収されるため、外科的介入や廃棄物の発生を大きく抑制するという利点を持つ。現在では、主に以下 3 タイプの物質がトランジエント・マテリアルに応用されている:金属(マグネシウム、亜鉛、鉄、モリブデンなど)、ポリマー(PVA、PVP、PLGA、PCL など)、半導体材料(シリコンナノメンブレン)[5]。これらの素材を応用した例として、完全な生分解性を示すマグネシウム・モリブデン電池(Mg-Mo)が開発されている[6](Figure 3.2c)。その発電性能は、0.045 mW(起電圧は 0.45 V、電流密度は 0.1 mA/cm²)であり、少なくとも 24時間の定電圧動作が確認されている。また、PGScin/AgNWで構成された薄膜ナトリウムイオン電池も報告されており、0.3 W h/kg のエネルギー密度が確認されている[7](Figure 3.2d)。この電流源は全て食用素材で構成されており、生体で摂取可能である。以上、生体との物質的な相性を意識した電源についてまとめた。

次に,バイオデバイスの汎用性を左右するメカニカル・ミスマッチ(弾性率の違い)について考える. 例えば,ヒトの皮膚組織におけるヤング率は 0.1~2.4 [MPa]であるのに対し,

一般的なシリコンベースのチップは GPa オーダーである[8]. このように既存デバイスと生体組織間で発生するメカニカル・ミスマッチは、身体活動(曲げ/伸ばし/捻り)に伴う予期せぬ破損や性能低下を引き起こす危険性を孕んでおり、結果としてセンシングデータの劣化を招くことが予想される。そこで、柔らかなポリマー基盤上に電子素子を直接実装することで、生体組織/デバイス界面の接点をシームレスにする取り組みが報告されている。例えば、伸縮透明テープに無線給電用アンテナを実装した E-tattoo が挙げられ[9] (Figure 3.2e)、折り曲げや伸縮が頻繁に発生する皮膚表面への貼り付けが可能とされている。このように、デバイス/生体界面に柔らかなレイヤーをかませる手法は、特に体表で使用するデバイスに適当であると言える。一方で、ファブリックタイプの電池を利用した、メカニカル・ミスマッチ改善も提案されている。例えば、ファイバー状の亜鉛空気電池を衣類に織り込むことで、着用可能な高電力電源(体積エネルギー密度は 36.1 mW h/cm³)が構築可能であり、LEDやスマートフォンの充電が実証されている[10] (Figure 3.2f)、以上、デバイスを身に着けるという観点からメカニカル・マッチングについて説明した。

最後に、発電と同時にセンサとしても機能する高機能電源を紹介する。まず例として挙げるのは、ファイバー状に構築されたバイオ燃料電池と PENG を組み合わせたハイブリッド電源であり、生化学エネルギーと運動エネルギーから電気エネルギーを取り出すことが可能となっている[11] (Figure 3.2g). 同時に、本デバイスではフレキシブルな電源素材に起因した圧電効果の応用により、例えば血流のような連続振動が検出可能である。このような、高発電性能と圧力センサ機能を兼ね備えた電源は非常に斬新なコンセプトであると言える。他方、市販の集積回路/アナログ・フロント・エンド/マイコン/NFC 用メモリ)を駆動するための電源(Mg-Ag/AgCl)も開発されており[12] (Figure 3.2h)、電池内のアノード/カソード間に汗が流入することで電極反応が促進される(重量エネルギー密度は~580 W h/kg)、これは、汗によって駆動する自己稼働型無線センサとして捉えることができ、将来の医療用IoMT 機器に最も近い実施例である。以上、ハイブリッド化による4種類の拡張機能を紹介することで、出力性能に留まらない電源の開発指針を示した。

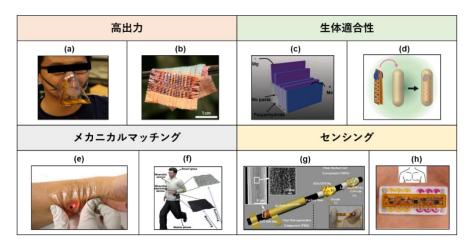


Figure 3.2 The increased functionality of wearable hybrid power source (modified from [3-4, 6-7, 9-12]).

3.2 ワイヤレス給電システムと金属空気電池

第2章で取り扱ったレシーバー共振器 (1巻き)を用いた場合,ワイヤレス給電システムの電力伝送効率は概ね10%に留まり、赤色 LED 点灯に必要な約1.8Vの電力供給が限界であった。ここで、レシーバー側で供給する電力を上昇させたい場合は、トランスミッターに与える発振器出力を増大させる必要がある。しかしながら、これはトランスミッターから発生する高周波磁界の増大に繋がり、生体組織の発熱といった悪影響を及ぼしかねない。そこで、本節ではワイヤレス給電システムに金属空気電池を組み込んだハイブリッド電源を開発することで、磁界強度の抑制と電源の高出力化に取り組んだ。その特徴は、レシーバー側コイルの材料に還元力の強い卑金属を利用し、これらをそのまま金属空気電池のアノードに活用した点である。本節では、これら卑金属から成るコイルの給電性能について考察すると共に、金属空気電池の発電性能を評価する。

3.2.1 卑金属コイルを用いた共振回路の作製と評価

本章で使用するワイヤレス給電システムは, 前章の項 (2.2.5) で実装したものと同様であ り、Figure 3.3 のような回路図で表される.電力伝送に使用するトランスミッター側共振器 の構造は前章と同様の LCC 型であり、13.56 MHz の共振周波数を示す。また、コイルの巻 き数やインダクタンス,各チップコンデンサの容量に関する詳細は Table 3.1 に,その外観 と等価回路図を Figure 3.4a-b に示す。また、Figure 3.4c に示す周波数特性より、共振周波 数付近における反射係数は,-25.5 dB(50 Ωの負荷抵抗が接続された場合は点線)と-1.6 dB(50 Ωの負荷抵抗がない場合は実線)を示すことから、共振器特性としては十分である ことが窺える. 一方, 本実験で使用するレシーバー側共振器については, これまで利用した 金製(Au)コイルの他に,以下の卑金属を用いたコイルを作製する:亜鉛(Zn),マグネシ ウム (Mg), アルミニウムを3%と亜鉛を1%を添加したマグネシウム合金 (AZ31). これ ら卑金属製ワイヤは, ジャパン・ファインスチール株式会社より寄付していただいたサンプ ル品である.各レシーバー側共振器の外観と等価回路図,および周波数特性を Figure 3.4co に示す.また,それぞれの設計パラメータを Table 3.1 に示す.このとき,各素材で作製 するコイルは,プレス機によって薄膜化し (厚さ 0.04 mm),コイルの直径は 11.5 mm に統 一した. また, 4700 pF の共振コンデンサを並列に接続することにより, 13.56 MHz で駆動 する共振器を作製した. しかしながら, 素材によるパラメータの違いやハンドメイドによる サンプルのばらつきは避けられず、最終的に実装したレシーバーの共振周波数と反射係数 は以下の通りであった. 共振周波数: 13.60 MHz (Au), 13.61 MHz (Zn), 13.51 MHz (Mg), 13.54 MHz (AZ31), 反射係数: -8.5 dB (Au), -7.6 dB (Zn), -5.6 dB (Mg), -3.9 dB (AZ31). 以上の結果より、概ね Au>Zn>Mg>AZ31 の順序で共振特性の良さが実証された. ここで、 各レシーバーの反射係数の違いについて、その原因を考察する. まず、主となる原因は各部 材の導電性にあると考えられ、各コイルの寄生抵抗は以下の通りであった。寄生抵抗:0.11

 Ω (Au), 0.07 Ω (Zn), 0.23 Ω (Mg), 0.43 Ω (AZ31). このような, 寄生抵抗の違いは, 各金属特有の導電率の違いや,各ワイヤを構成する当該金属の総量などに起因すると考えられる。次に,作製したレシーバーとトランスミッターを用いて電力伝送効率を計測する。 Figure 3.3 に示すように,各共振器は 10 mm の間隔で設置され,ネットワークアナライザを用いた伝達係数 (S_{21}) の計測を実施した.このとき,トランスミッターと各種レシーバーを用いたときの伝達係数を Figure 3.4 の f,i,l,o に示す(赤色実線).この結果より,共振周波数における電力伝送効率と伝達係数は以下の通りであった.電力伝送効率: 7.8% (Au), 5.6% (Zn),4.8% (Mg),2.2% (AZ31),伝達係数: -11.1 dB (Au),-12.6 dB (Zn),-13.2 dB (Mg),-16.5 dB (AZ31).項(2.2.7)より,レシーバー側共振器の反射係数変化によって,電力伝送効率が変化することが確認できており,本実験でも同様の現象が観測された.以上,異なる金属を用いたレシーバー側共振器のインピーダンス特性の違いが,電力伝送効率に変化を及ぼすことを実証した.また,得られた知見として,Au>Zn>Mg>AZ31 の順序で電力供給特性が高いことが分かった.

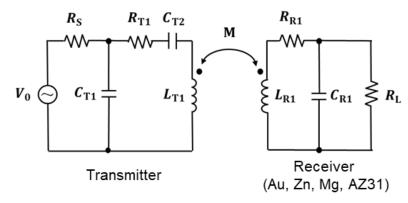


Figure 3.3 The circuit diagram of our WPT system composed of the transmitter and the metal receivers.

	Transmitter	Receiver Au	Receiver Zn	Receiver Mg	Receiver AZ31
Material	Copper	Gold	Zinc	Magnesium	AZ31 Magnesium Alloy
Wire Diameter	0.216 mm	pressed	pressed	pressed	pressed
Coil Diameter	35 mm	11.5 mm	11.5 mm	11.5 mm	11.5 mm
Number of turns	5: N _{T1}	1: N _{R, Au}	1: N _{R, Zn}	1: N _{R, Mg}	1: N _{R, AZ31}
Inductance (measurement data)	1642 nH: L _{T1}	39 nH: <i>L</i> _{R, Au}	31 nH: L _{R, Zn}	35 nH: <i>L</i> _{R, Mg}	34 nH: L _{R, AZ31}
Capacitor in parallel	470 pF: C _{T1}	4700 pF: C _{R, Au}	4700 pF: C _{R, Zn}	4700 pF: C _{R, Mg}	4700 pF: C _{R, AZ31}
Capacitor in series	100 pF: C _{T2}				
Parasitic Resistance (measurement data)	0.111 Ω: R _{T1}	0.106 Ω: R _{R, Au}	0.07 Ω: R _{R, Zn}	0.230 Ω: R _{R, Mg}	0.433 Ω: R _{R3, AZ31}

Table 3.1 A list of component parameters for each resonator.

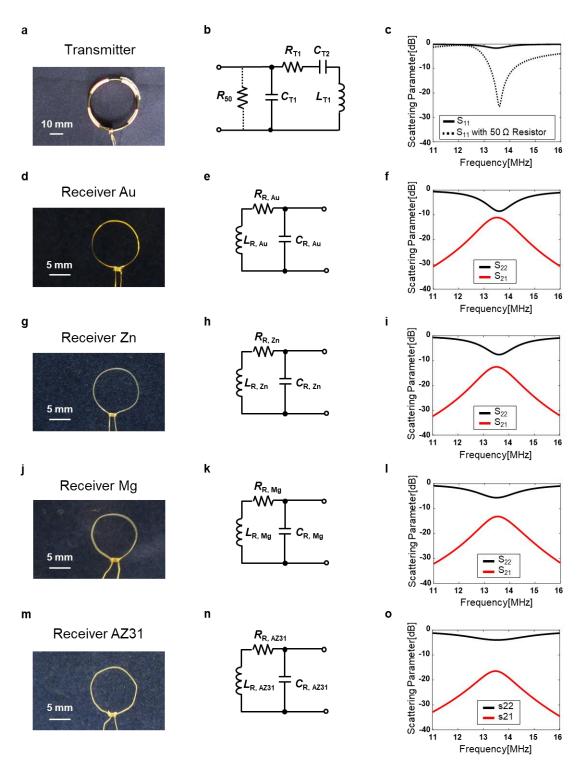


Figure 3.4 Photographs and equivalent circuits of constituent resonators: (a-b) transmitter, (d-e) receiver Au, (g-h) receiver Mg, (j-k) receiver Mg, (m-n) receiver AZ31. Also, their reflection coefficients (black) and transmission coefficients (red) received on (f) Au, (i) Zn, (l) Mg, (o) AZ31 receivers. Dashed line represents the LC resonator with 50 Ω resistance.

前章の項(2.2.7)で解析したように、共振器間の距離伸長による結合係数の減少は、電力 伝送効率の減衰に繋がる. Figure 3.5 は, 同様の実験結果であり, トランスミッター/レシ ーバー間の距離を 1~10 mm(1 mm 間隔)で変化させたときの電力伝送効率[%]の変化を 示している. 大きな傾向として, どのレシーバーを用いた場合も, 距離の伸長に伴って電力 伝送効率が減少する様子が見て取れる.また,距離が 1 mm のとき,各電力伝送効率は最大 値を示し,それぞれ 19.6% (Au), 17.6% (Zn), 14.8% (Mg), 7.4% (AZ31) であった. ここまで、Au、Zn、Mg、AZ31を利用したレシーバー側共振器を実装し、電力伝送効率に ついて評価を行った. その結果、卑金属コイルの中では、Au に次ぐ電力伝送効率を示した Zn が、ハイブリッド電源のコイルとして優れていると言える。一方で、これら卑金属製コ イルは、金属空気電池のアノードとして併用するため、涙液中でのライフタイムは重要な指 標である. 従って, 各種レシーバーを人口涙液中に設置し, 電力伝送効率を計測した結果を Figure 3.6 に示す. 本実験では、比較のため Zn、Mg、AZ31 製のレシーバーとトランスミ ッター間の距離を調整し,ライフタイム計測の初期値が約 10 %(電力伝送効率)になるよ う設定した. 図より, Mg, AZ31 に関しては, 人口涙液にコイルを浸した直後から, 急速に 電力伝送効率が低下する様子が見て取れる(黒色実線,青色実線). その後,約 200 min 時 点では電力伝送効率が 0 %となるが,これは,溶液に浸されていた Mg,AZ31 製コイルが 完全に溶解されたことを意味しており,断線によってコイルとしての受電機能がなくなっ たと言える. 他方, Zn 製コイルについては, ライフタイムが 1000 min 以上に及ぶ様子が 見て取れる(赤色実線). これは, Mg, AZ31と比較して, 非常に長いライフタイムであり, 涙液環境下で金属空気電池を長時間利用することを考えた場合、大きなアドバンテージと なる. Zn 製コイルのライフタイムに関しては、マグネシウムが亜鉛よりイオン化傾向が大 きく, 水素過電圧が高いためであると考察した[13]. この結果より, 金属空気電池を生体溶 液中で長期利用する場合、Zn 製コイルが最適であるという結論が得られた.

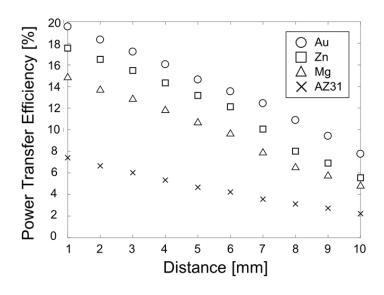


Figure 3.5 Power transfer efficiency as a function of the radiation distance between the transmitter and metal receivers.

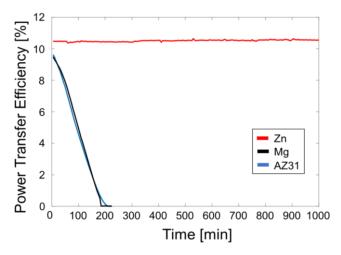


Figure 3.6 Lifetime of power transfer efficiency for each metal receiver.

ここまで,卑金属製コイル:Zn,Mg,AZ31 について,電力伝送効率およびライフタイ ムの観点から評価を行った. 結果として, どちらの評価指針に照らしても, Zn 製コイルの 優位性が実証されたため、本研究で提案するハイブリッド電源には Zn 製コイルを使用する ものとする. ここで、Zn 製コイルの共振特性向上を目的として、コイルの巻き数を 1~3 に 変更したレシーバーを作製した. 各レシーバー側共振器について, コイルの巻き数やインダ クタンス, 各チップコンデンサの容量に関する詳細は Table 3.2 に, その外観と等価回路図, および周波数特性を Figure 3.7 に示す.このとき,各レシーバーの共振周波数は以下の通り であった:共振周波数 13.61 MHz(1 巻き),13.55 MHz(2 巻き),13.84 MHz(3 巻き). 項 (2.2.7) で議論したように、コイルの巻き数増加は、インダクタンスの増加に繋がり、Zn 製アンテナについても同様の結果が得られた:58 nH(1 巻き),117 nH(2 巻き),168 nH (3 巻き). また、インダクタンスの増加はアンテナの反射特性に影響を与えることも確認 できた. Figure 3.7 の c,f,i より, 各レシーバーの反射係数は以下の通りであった:-7.6 dB (1巻き), -11.8 dB (2巻き), -2.3 dB (3巻き). ここで, 3巻きのレシーバーに関しては (Figure 3.7i), 入力インピーダンス実部の値が $50~\Omega$ を越えているため, 反射係数が 0~に近 づいており(黒色実線), 共振器に並列となるような負荷抵抗 50 Ωを差し込むことで, LC 共振器に保持されていたエネルギーのほとんどが負荷抵抗にて消費されることが分かる (黒色点線). 実際にこれらレシーバーを用いて,電力伝送効率と伝達係数を計測した結果 が以下の通りである.電力伝送効率:6.9% (1 巻き),11.0% (2 巻き),15.1% (3 巻き), 伝達係数:-11.6 dB(1 巻き),-9.6 dB(2 巻き),-8.2 dB(3 巻き).この結果から,コイル の巻き数に応じた電力伝送効率の向上が見て取れる(赤色実線). 以上より, Zn 製コイルの 電力伝送効率改善について,コイルの巻き数増加が有効であることを確認した.最後に, Figure 3.8 に眼球回転モデルを用いた電力伝送効率の変化に関する実験結果を示す. 項 (2.3.1) の解析結果同様, 眼球の回転に伴った結合係数の減衰により, 電力伝送効率が減少 する様子が確認できた.以上より,金製コイル同様,Zn 製コイルについても共振特性を評 価することができた.

T 11 22 11 (1 . 1 1	1	/1 11 /, • 1 ,	7 .
Table 3.2 A list of electrical	parameters for single,	aouble/triple ti	irn Zn receivers.

	Receiver 1	Receiver 2	Receiver 3
Material	Zinc	Zinc	Zinc
Wire Diameter	0.13 mm	0.13 mm	0.13 mm
Coil Diameter	11.5 mm	11.5 mm	11.5 mm
Number of turns	1: N _{R1}	2: N _{R2}	3: N _{R3}
Inductance (measurement data)	58 nH: <i>L</i> _{R1}	117 nH: <i>L</i> _{R2}	168 nH: <i>L</i> _{R3}
Capacitor in parallel	4700 pF: C _{R1}	1500 pF: C _{R2}	680 pF: C _{R3}
Capacitor in series			
Parasitic Resistance (measurement data)	0.270 Ω: R _{R1}	0.382 Ω: R _{R2}	0.484 Ω: R _{R3}

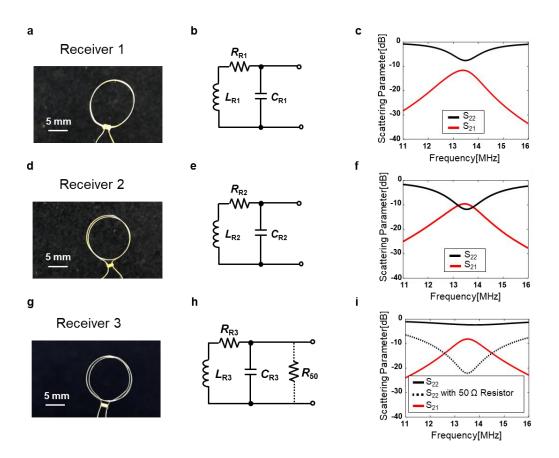


Figure 3.7 Photographs and equivalent circuits of Zn receivers: (a-b) single turn, (d-e) double turn, (g-h) triple turn. Also, their reflection coefficients (black) and transmission coefficients (red) received on (c) single turn, (f) double turn, (i) triple turn receivers. Dashed line represents the LC resonator with 50 Ω resistance.

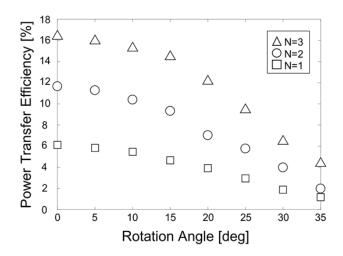


Figure 3.8 Power transfer efficiency as a function of the eye rotation angle measured with the single turn (square), the double turn (circle), and the triple turn (triangle) receivers.

3.2.2 金属空気電池の作製と評価

前項で議論した卑金属製コイルを用いて金属空気電池の構築を考える。Figure 3.9 に金属空気電池の概要図を示す。電池の放電反応は、金属を酸化するアノード極と酸素を還元するカソード極により成り立つ。例えば、マグネシウム(Mg)や亜鉛(Zn)をアノード極として利用する場合、それぞれの酸化反応は式(3.1)および式(3.2)のようになる[1,14]。

$$Mg \to Mg^{2+} + 2e^{-}$$
 (3.1)

$$Zn \to Zn^{2+} + 2e^-$$
 (3.2)

一方,酸素の還元反応については,固相(触媒),液相(電解液),気相(酸素)の三層界面で起こり,一般的な対極として用いられる白金(Pt)上では式(3.3),また本項で紹介するBOD(Bilirubin Oxidase)を修飾した電極上では式(3.4)に化学反応式に従う[1,15].

$$O_2 + 2H_2O + 4e^- \rightarrow 4OH^-$$
 (3.3)

$$O_2 + 4H^+ + 4e^- \rightarrow 2H_2O$$
 (3.4)

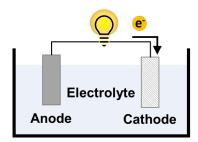


Figure 3.9 Schematic illustration of a metal air battery.

ここで、マグネシウム空気電池 (Mg-Air) と亜鉛空気電池 (Zn-Air) を比較したとき、その 理論電圧とエネルギー密度はそれぞれ以下の通りである. 電圧: 3.1 V (Mg-Air), 1.65 V (Zn-Air), エネルギー密度: 6.8 kW h kg⁻¹ (Mg-Air), 1.3 kW h kg⁻¹ (Zn-Air) [1]. これ より、マグネシウム空気電池がより発電性能において優れる電池であると言える. しかしな がら, 実際にはマグネシウム空気電池は広く普及しておらず, その理由としてマグネシウム 電極の腐食とマグネシウムの消費に伴う水素の放出が課題として挙げられる[16]. ここで, 亜鉛電極は、電極表面での水素発生が起こりにくく(水素過電圧が高い)、自己放電が小さ いという特徴を有している[13]. 従って, 前項で議論したように溶液中での長時間使用が期 待できる点も含めて、金属空気電池としての汎用性が高いと言える. 他方, マグネシウム空 気電池の性能悪化を及ぼす原因は空気極にも存在し,酸素還元反応の速度律速が課題とな っている. 現状, カソード極には Pt が最もよく利用されており, 優れた性能が確認されて いる一方で[1],空気極の過電圧低減を目的とした触媒の研究も広く進められている.ここ で酸化還元酵素の一種である BOD について紹介する.BOD は,マルチ銅オキシダーゼの 一種であり, 酸素を水に還元する触媒作用を持つ. 特に, 弱酸性から中性まで幅広い pH で 活性を示すことから, バイオ燃料電池のカソードとして用いられることが多く, また, Pt よ りも小さな過電圧を示すことからも (0.4~0.55 V) [15], その有用性は高いと言える. 本研 究室では BOD を用いた酵素電極が既に開発されており, バイオ燃料電池への応用に成功し ている[17]. 従って, 本項では上記で述べた卑金属電極に加え, Pt および BOD のカソード 特性を評価することで,開放電圧や電流密度の観点から発電性能に優れた金属空気電池を 選定する, また最終的に, 作製した金属空気電池をコンタクトレンズ型デバイスに応用した 場合の性能評価を行う.

まずは、各電池の発電性能を比較するため、3種類のアノード極:Zn、Mg、AZ31 と 2種類のカソード極:Pt、BOD を用意した。Pt で使用したものと同様のワイヤを使用し、カソード電極として使用する Pt は株式会社ニラコから購入した。一方、本研究で使用する Pt をコーディングしたフレキシブル電極を基盤としており、その上に Pt をからに Pt をからしたレイヤー構造をとる (Figure 3.10).

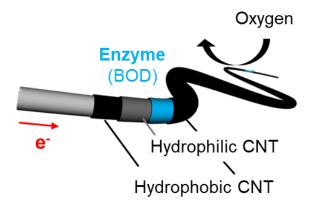


Figure 3.10 The schematic figure of a BOD biocathode.

ここで、BOD 電極の作製プロセスを以下に記す.

- (1) 5 mg/mL の CNT および 1.0 wt%の PTFE (Polytetrafluoroethylene) を含むエタノール 溶液 (疎水性 CNT 溶液) を用意し、CF に滴下後、80°Cのオーブンで乾燥させる. その後、滴下と乾燥を 3 回繰り返す (レイヤー構造: PTFE-CNT/CF).
- (2) 作製した電極を蒸留水で洗い、余分な CNT を除去する.
- (3) 酸処理を施した CNT を含む 1%の TritonX-100 溶液 (親水性 CNT 溶液) を用意し、 PTFE-CNT/CF に滴下後、80°Cのオーブンで乾燥させる. その後、滴下と乾燥を 3 回 繰り返す (レイヤー構造: Acid-CNT/PTFE-CNT/CF).
- (4) 作製した電極を 5 mg/mL の BOD 溶液に浸し、溶液温度を 4°Cに保ちながら、12 時間 攪拌する (レイヤー構造: BOD/Acid-CNT/PTFE-CNT/CF).
- (5) 作製した電極に疎水性 CNT 溶液を滴下し、室温で乾燥させる(レイヤー構造: PTFE-CNT/BOD/Acid-CNT/PTFE-CNT/CF).

次に、準備したアノード電極をコイル形状(直径 12 mm)に、カソード電極を棒状(長さ 10 mm) に成形した. その後, これらを組み合わせて電池を構築した. 電池電圧の変化とパ ワーカーブの計測結果を Figure 3.11 に示す.ここで,Figure 3.11 の a,c,e より,カソード 極を Pt にした場合の最大電力と電圧は以下の通りであった. 最大電力:29 μW (Zn-Pt), 331 μW(Mg-Pt),324 μW(AZ31-Pt),電圧:0.17 V(Zn-Pt),0.27 V(Mg-Pt),0.18V (AZ31-Pt). この結果より, Mg, AZ31 をアノードとして使った場合の発電性能が Zn よ りはるかに高いことが分かった. しかしながら、Zn 電極の表面における水素発生は Mg, AZ31 に比べ大きく抑制されていた. 一方, 各電池の開放電圧は以下の通りであった: 1.0 V (Zn-Pt), 1.5 V (Mg-Pt), 1.5 V (AZ31-Pt). これら実測開放電圧は, 理論開放電池より も低くなっているが、その理由はアノード極と電解質で発生する寄生反応によるものであ ると考察した[18]. 次に, Figure 3.11 の b,d,f より, カソード極を BOD にした場合の最大 電力と電圧は以下の通りであった.最大電力:184 μW(Zn-BOD),490 μW(Mg-BOD), 382 μW (AZ31-BOD), 電圧: 0.43 V (Zn-BOD), 0.5 V (Mg-BOD), 0.75 V (AZ31-BOD). また,各電池の開放電圧は以下の通りであり:1.5 V (Zn-BOD), 1.92 V (Mg-BOD), 1.97 V (AZ31-BOD), カソード極を Pt にした場合と比べて, 電圧の向上が見られた. これは, 酵素である BOD が還元反応の活性化エネルギーを下げたことにより, 過電圧が低下したた めであり, Pt に比べ大きな電池電圧を取り出せるようになったためである. Figure 3.12 は, BOD と Pt の還元反応を示すボルタモグラムである. 図より, BOD の還元反応は 0.55 V 付近から促進されはじめており,一方の Pt では 0.15 V から始まる様子が確認できる.以上 より、BOD の発電性能が優位であることが実証されたため、本章で開発する金属空気電池 のカソード極にはBODを採用することを決めた.

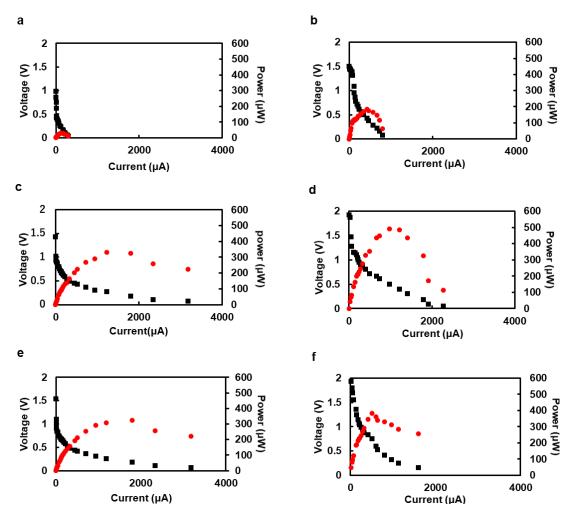


Figure 3.11 Battery performance of the (a-b) Zn, (c-d) Mg, and (e-f) AZ31 loop anodes coupled to a Pt cathode (left) or to bilirubin oxidase (BOD) biocathode (right).

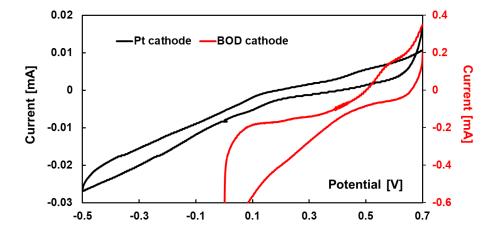


Figure 3.12 Cyclic voltammograms of oxygen reduction using a Pt wire (red) and a BOD biocathode (black).

最後に、各電池:Zn-BOD、Mg-BOD、AZ31-BOD について、定電流(100 μ A)を流した場合のライフタイムを計測した。各電池の電流値は、2~12 $k\Omega$ の抵抗器を適切に利用することで調節した。Figure 3.13 k り、Mg-BOD 電池における Mg 電極が最も早く溶解・断線してしまい(約 3.5 時間後)、その次に AZ31-BOD 電池に AZ31 電極が溶解・断線した(約 5 時間後)。この違いは、Mg k と AZ31 の解離速度に起因すると考えられる。一方で、Zn-BOD 電池のライフタイムは、16 時間を超えることが分かった。これは、Zn の解離速度が大きく関与していると考える。また、Figure 3.13 下部に示した写真は、Zn 製コイルの溶け方を時間経過ごとに撮影したものであり、徐々に Zn が溶解している様子が見て取れる。加えて、次節で説明する電解重合法により接着剤として応用した導電性高分子 PPy(Polypyrrole)が、Zn の溶解に伴い暴露する様子が窺える(18 時間後)。以上、本項では、Zn-BOD 電池の有用性(発電性能とライフタイム)を実験的に検証することができた。

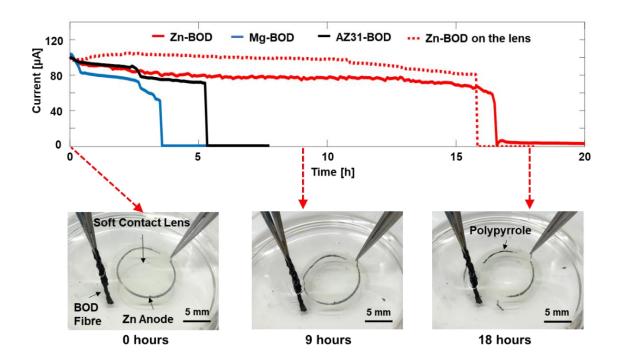


Figure 3.13 Lifetime measurements of the batteries (Zn-BOD, Mg-BOD, AZ31-BOD, and EC bonded Zn-BOD on a soft contact lens). Photographs of the Zn-air battery on a soft contact lens at 0 h, 9 h, and 18 h (bottom).

3.3 コンタクトレンズ型ハイブリッド電源

本節では、これまでに作製した卑金属製共振器と金属空気電池を組み合わせたハイブリッド電源を開発し、コンタクトレンズ型デバイスへ搭載する。卑金属製共振器とコンタクトレンズの統合については、2.4節で紹介した電解重合法を応用することで異種材料の接着を実現する。次に、ワイヤレス給電システムと金属空気電池を組み合わせたときの発電性能を分析すると共に、従来のワイヤレス給電システム単体と比較した際の利点を評価する。最後に、電源使用における温度特性や pH 特性を評価することでハイブリッド電源の生体適合性を示す。

3.3.1 導電性高分子を利用した異種材料の接着

2.4 節で取り扱った電解重合法は、コンタクトレンズと金製コイルの間で導電性高分子を重合する手法であり、結果としてコンタクトレンズ表層およびコイル電極の表面で成長した導電性高分子 PEDOT 膜が接着剤として機能することが明らかとなった。一方、本章で用いるコイルは亜鉛製であり、金と比べればイオン化傾向が高いという特徴を持つ。従って、電解重合に必要な酸化電圧を印加した場合、亜鉛電極表面では導電性高分子が生成されるよりも前に、亜鉛が溶解してしまう[19]。事実、亜鉛コイル表面における PEDOT 膜の生成は不可能であった。そこで解決策として、亜鉛電極表面に保護膜を形成することで、亜鉛の腐食スピードを低下させるというコンセプトが提案されており、サリチル酸(salicylate)を電解質とした PPy (Polypyrrole)の電解重合が報告されている[20]。具体的には、電極表面に生成された保護層(サリチル酸亜鉛錯体)が亜鉛の腐食スピードを抑制することで、その後の PPy 重合と導電性高分子膜成長が効果的に進むことが明らかとなっている。よって、本章における亜鉛コイルとコンタクトレンズの接着には、PPy の電解重合を応用することとした (Figure 3.14)。

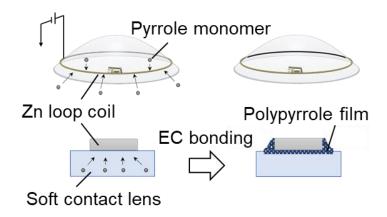


Figure 3.14 Schematic illustration of the electrochemical (EC) bonding for a Zn loop coil.

以下に具体的な重合工程を示す.

- (1) 電解重合を実施するための溶液を用意する. 0.5 M の Pyrrole モノマーと 1 M のサリチル酸ナトリウムで構成された電解液を配合し, マグネチックスターラーを用いて数時間 攪拌させる.
- (2) 市販のソフトコンタクトレンズを(1)で作製した電解液に浸し、溶液温度を 4° Cに保ちながら 1 日保管する.
- (3) Pyrrole モノマーと電解液を吸い込んだソフトコンタクトレンズ表面に、亜鉛製コイルを密着させる。また、亜鉛製コイルはポテンショスタットの作用電極 WE に接続し、対極 CE には白金電極を使用する。ここで、参照電極 RE (Ag/AgCl) に対して 1.6 V の電圧を印加すると、Pyrrole モノマーの重合が進み、亜鉛製コイルの表面に Polypyrrole 膜が成膜される。このとき、Polypyrrole 膜は黒色の表面色を示す(Figure 3.15).
- (4) 作用電極である亜鉛製コイルの表面に導電性高分子である Polypyrrole が成膜されたことを確認した後,これを重合用溶液から取り出し PBS (0.1 M, pH=7.0) にて保管する.

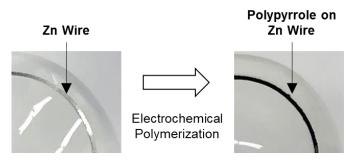


Figure 3.15 Photographs of a Zn wire attached on a soft contact lens before (left) and after (right) EC bonding.

ここで、亜鉛製コイルとコンタクトレンズの接着強度を視覚的に評価するため、重合後のソフトコンタクトレンズを指によって形状変化させた(Figure 3.16)。 亜鉛製コイルはソフトコンタクトレンズ表面にしかっりと固定されており、接着面がはがれることはなかった。

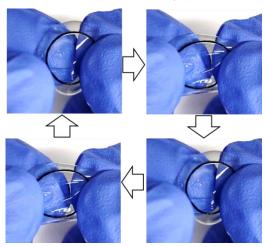


Figure 3.16 Deformation tests of an EC bonded Zn wire/a soft contact lens.

次に、電解重合を利用した接着手法が給電素子の周波数特性に影響を及ぼさないか確認する.項(2.4.3)同様に、亜鉛製レシーバーをソフトコンタクトレンズに接着する前後で入力インピーダンスを計測した(Figure 3.17).灰色実線は重合前、黒色点線は重合後を意味する.このとき、インピーダンスの実部と虚部に大きな変化が見られなかったことから、亜鉛製コイルへのPolypyrrole 付着による共振回路への影響はほとんどないと結論づけた.

最後に、本デバイスを構成する亜鉛製レシーバー、整流回路、LED、BODファイバー(各素子の詳細は次項で解説する)を搭載したソフトコンタクトレンズ型デバイスの外観を示す(Figure 3.18)。本デバイスの特徴として、亜鉛製コイルが金属空気電池のアノードとして機能することから、亜鉛電極の表面は涙液に暴露しておく必要がある。よって、本章では亜鉛電極をソフトコンタクトレンズ(Pyrrole と電解質を含む)に密着させた状態で電解重合を行い、電極の接着面のみに Polypyrrole を成膜することに成功した(Figure 3.14)。以上、ハイブリッド電源とソフトコンタクトレンズの接着手法についてまとめた。

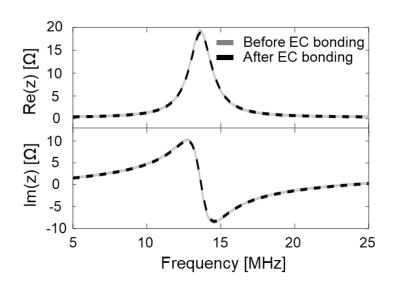


Figure 3.17 Impedance plots of the LC resonator consisting of a chip capacitor and a Zn wire before (gray) and after (red) EC bonding.

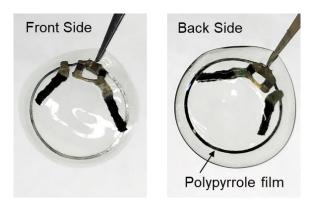


Figure 3.18 Photographs of our hybrid power source bonded on a soft contact lens taken from front side (left) and back side (back side).

3.3.2 発電性能の評価

Figure 3.19 に作製したコンタクトレンズ型ハイブリッド電源と豚の眼球表面でデバイスが駆動する様子を示す。本章で開発するハイブリッド電源は、ワイヤレス給電システムと亜鉛空気電池を組み合わせたものであり、AC電圧(ワイヤレス給電)とDC電圧(電池)を足し合わせた電圧が電源出力となる。まず、定常状態においては、涙液を介した亜鉛製コイル/BODファイバー間で開放電圧(V_{DC1})が得られる。ここで、トランスミッターから高周波磁界(13.56 MHz)が送電されると、亜鉛製コイルの共振コンデンサ両端において、交流電圧(赤色正弦波)が加算される。これを視覚的に評価するために、駆動電圧 1.7 V の赤色LED を組み込み、無線給電による点灯を確認した。一方で、共振用コンデンサの両端に整流回路を搭載することで、電源出力の昇圧が可能であり、交流電圧と開放電圧(V_{DC1})に整流化された電圧(V_{DC2})が加算される(青色正弦波)。これにより、駆動電圧 2.4 V の青色LED を点灯させることに成功した。このように、本章で作製したハイブリッド電源は、電源出力の向上以外にも、電気回路的な工夫を施すことで、デバイスの接続ボートに応じたマルチ・チャネル化が可能となる。以降では、ここで示した昇圧メカニズムについて等価回路を用いた解説を行うと共に、第2章で作製したワイヤレス給電システム単体と比較した場合の発電性能について述べる。

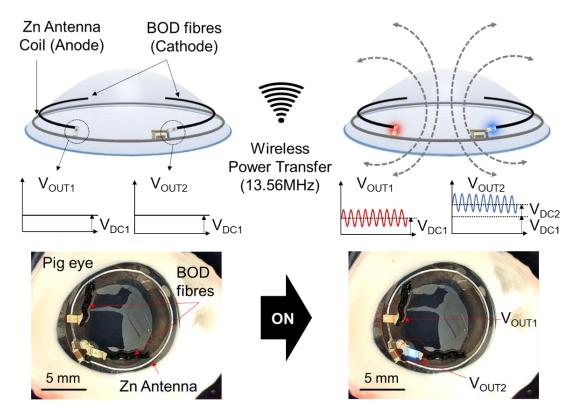


Figure 3.19 Schematic illustration (top) and photographs (bottom) of our hybrid power source composed of a wireless power transfer system and a Zn–air battery.

Figure 3.20 にハイブリッド電源の等価回路図を示す. 本電源は, 主に無線受電用の LC 共 振器と亜鉛空気電池 (亜鉛製コイル/BOD ファイバー) により構築されている. ここで, 共 振用コンデンサ(C)の片側に接続ポートをとり、涙液を介して BOD と接続した場合の計 測電圧を $V_{
m OUT1}$ とする.このとき $V_{
m OUT1}$ は,亜鉛空気電池の開放電圧($V_{
m DC1}$ = 1.5 m V)と受電し た AC 電圧($V_{AC}=0.5\,V_{pp}$)の合算値であり,亜鉛空気電池とワイヤレス給電システムの統 合を意味する. ここで, 上述した電圧加算が起こるメカニズムを等価回路図から分析する. まず基礎知識として、トランスミッターから20 Vnnの正弦波を出力した場合、1巻きのレシ ーバー側 LC 共振回路で受電可能な AC 電圧は2.0 V_{pp}である(Figure 3.21a-b). このとき, 電力伝送効率は 10 %になるよう距離を調整している. 次に, LC 共振回路に整流回路を組 み込み,平滑化コンデンサ($C_{
m smooth}$)の両端で電圧を計測した場合,整流電圧は($V_{
m DC2}$ = 0.8 V) を示す (Figure 3.21c-d). この結果から, 平滑化コンデンサは DC 電圧源として捉え ることができる. 次に、整流回路を搭載した LC 共振器に BOD ファイバーを組み合わせ、 $V_{
m OUT1}$ を計測した結果を Figure 3.21e-f に示す.赤色矢印は LC 共振回路(発振器と同義)を 介した亜鉛空気電池の起電圧を表す.この等価回路図から, $V_{
m OUT1}$ で観測される電圧は亜鉛 空気電池の開放電圧($V_{DC1}=1.5\,\mathrm{V}$)および受電した AC 電圧($V_{AC}=0.5\,\mathrm{V_{pp}}$)の合計値であ る言える. 次に、平滑化コンデンサ(C_{smooth})の負電荷側にポートをとり、涙液を介して BOD と接続した場合の計測電圧を $V_{
m OUT2}$ とする.このとき $V_{
m OUT2}$ は,亜鉛空気電池の開放電 圧($V_{DC1}=1.5$ V)と受電した AC 電圧($V_{AC}=0.5$ V_{pp})に加え、整流電圧($V_{DC2}=0.8$ V) が合算された電圧値を示す (Figure 3.20). この昇圧過程を Figure 3.21 g-h に示す. 赤色矢 印は, 亜鉛空気電池と発振器および整流電源を介した起電圧を表す. この等価回路図から, $V_{
m OUT2}$ で観測される電圧は,亜鉛空気電池の開放電圧($V_{
m DC1}=1.5~
m V$)と受電した m AC 電圧 $(V_{AC} = 0.5 \, V_{pp})$ および整流電圧 $(V_{DC2} = 0.8 \, V)$ を合算した $0.5 \, V_{pp} + 2.3 \, V$ となる.一方, 受電したAC電圧について、本来得られるべき $V_{AC}=2.0~V_{pp}$ が $0.5~V_{pp}$ に減衰した理由として、 AC 電源(LC 共振器)に直列接続された亜鉛空気電池の電解質(溶液抵抗)が AC 電源の 内部抵抗として働いたためであると考察した(Figure 3.21e,g 参照).

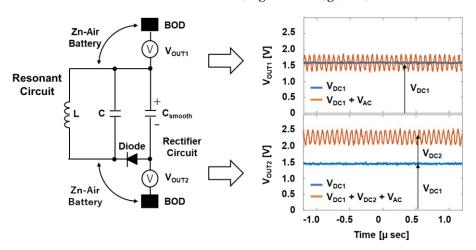


Figure 3.20 The equivalent circuit of the hybrid power source and the performance.

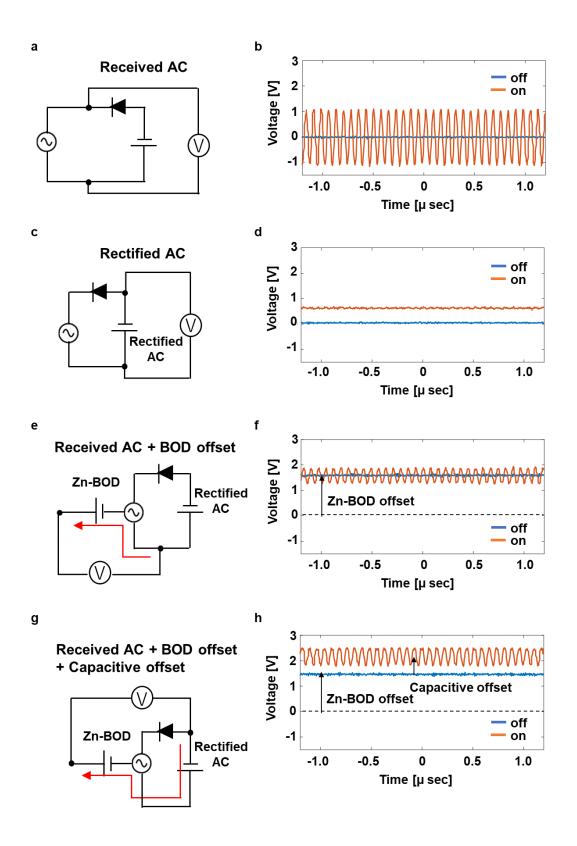


Figure 3.21 Equivalent circuits and the measured voltages for (a-b) wirelessly received AC, (c-d) rectified AC, (e-f) combination of received AC and BOD offset, and (g-h) combination of received AC, BOD offset and capacitive offset.

次に、作製したハイブリッド電源の発電特性を Figure 3.22 に示す. ここでは比較実験と して亜鉛空気電池の電源出力および、上述した $V_{\text{OUT1}}(V_{\text{AC}} + V_{\text{DC1}})$ と $V_{\text{OUT2}}(V_{\text{AC}} + V_{\text{DC1}} + V_{\text{DC2}})$ を計測対象とした. このとき, それぞれの電源負荷として, $330\sim150$ k $[\Omega]$ の可変抵抗器 (330, 400, 470, 510, 680, 830, 1k, 1.47k, 2k, 2.68k, 3.3k, 4k, 4.7k, 5.1k, 6.1k, 8.1k, $10\mathrm{k},\ 20\mathrm{k},\ 30\mathrm{k},\ 40\mathrm{k},\ 100\mathrm{k},\ 135\mathrm{k},\ 150\mathrm{k}\left[\Omega\right]$)を挿入した場合の電圧をオシロスコープで 計測し, 抵抗値を用いて電力を計算した. 亜鉛空気電池単体の開放電圧と最大電力値は, そ れぞれ 1.5 V と 74 μW であった. 次に, ワイヤレス給電システムと亜鉛空気電池を組み合 わせた開放電圧は、各ポートにおいて以下の通りであった: $1.7 \text{ V} (V_{\text{OUT1}})$, $2.5 \text{ V} (V_{\text{OUT2}})$. 次に、これらハイブリッド電源の最大電力値について分析する. 負荷抵抗の値が 150k~2k [Q]に減少するにつれ、負荷抵抗に流れる電流値が上昇し、結果として電力が上昇する様子 が確認できた. このとき, 電力値はそれぞれ $75\,\mu\mathrm{W}$, $200\,\mu\mathrm{W}$ であった. しかしながら, 負 荷抵抗の値を 2k Ω以下に低下させていくと, 電力値は一旦減少し, その後, 緩やかに上昇 する傾向が確認できた.一方,電圧に関してはそれぞれ 0.3 V 付近に収束する様子が見て取 れる.これは、小さな負荷抵抗により亜鉛空気電池がほとんど機能しなくなったためである と考察した. しかしながら, LC 共振器 (発振器と同義) の観点から分析すれば, 発振器に 直列接続された内部抵抗が減少したと捉えることができ,結果として電流量が上昇したと 言える. 以上, ハイブリッド電源の発電性能について考察した. このハイブリッド電源の大 きな特徴は、高抵抗器を挿入した場合に得られる高い電圧値と AC/DC 電圧の切り替えが 可能であるという点にある: $V_{
m DC1}$ = 1.5 V, $V_{
m AC}$ + $V_{
m DC1}$ = 0.5 $V_{
m pp}$ + 1.5 V, $V_{
m AC}$ + $V_{
m DC1}$ + $V_{
m DC2}$ = 0.5V_{pp} + 2.3 V. 本特性より, 生体内へのイオン導入を実現するイオントフォレシス用デバイ ス[21]やドラッグデリバリーシステム[22]といった電圧駆動型機器への応用も期待できる.

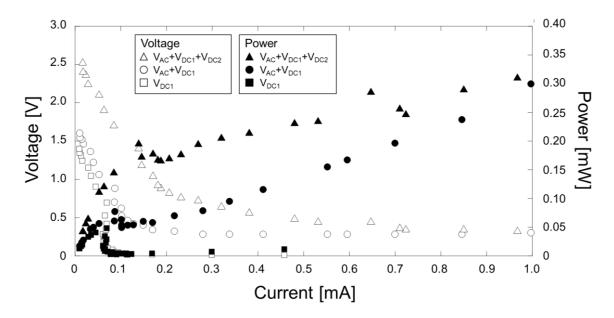


Figure 3.22 A performance comparison of the hybrid power sources for V_{DC1} (square), $V_{AC} + V_{DC1}$ (circle), and $V_{AC} + V_{DC1} + V_{DC2}$ (triangle).

最後に,作製したハイブリッド電源と第2章で作製した電力伝送効率の性能比較を行う. Figure 3.23 にそれぞれの発電性能を示す. 評価基準は、①トランスミッターへの入力電圧 $(V[V_{pp}])$,②トランスミッターから発生する高周波磁界強度 $(H = NV_{rms}/2rR[A/m])$,③ トランスミッター側の消費電力 $(P = V_{rms}^2/R [W])$. ここで算出する磁界強度とは、トラン スミッター側コイルの中心で発生する磁界の強さを意味する. 本来であれば、電磁界シミュ レーションを用いて, 眼球組織における磁界強度を評価する必要があるが, 本項では簡易的 な計算を用いた比較に留める. ここで、コンタクトレンズ上で 1.8 V の DC 電圧を確保する 場合を考える. 項(3.2.1) より、従来のワイヤレス給電システムと 1 巻きの金製コイルを 10 mm 間隔で配置したとき, 7.8 %の電力伝送効率を示すことが分かっている. このとき, レシーバー側で $3.6 \, V_{pp}$ を確保するためには、トランスミッター側の入力電圧をV =46.15 Vppに設定する必要がある.一方,ハイブリッド電源を使用する場合,亜鉛空気電池に よる DC 電圧 $(1.5\,V)$ の確保が期待できるため、残りの $0.6\,V_{pp}$ をワイヤレス給電にて補え ば良い. ワイヤレス給電システムと 1 巻きの亜鉛製コイルを 10 mm 間隔で配置したとき, 5.6%の電力伝送効率を示すことが分かっているので、トランスミッター側の入力電圧は V = 10.7 Vppに設定する必要がある.このとき,トランスミッター側コイルの中心における 磁界強度は、従来のワイヤレス給電システム単体と比較して 4.3 分の 1 に抑制可能である. また、消費電力についても18.6分の1に減少することが分かる。以上より、ハイブリッド 電源を用いることで、生体作用が懸念される高周波磁界暴露を抑制しつつ、高出力の電圧を 確保することができた. また, 先述した電源の多チャンネル化による AC/DC 電圧の切り替 えや組み合わせ機能を鑑みれば、様々なバイオデバイス応用を期待することが出来る.

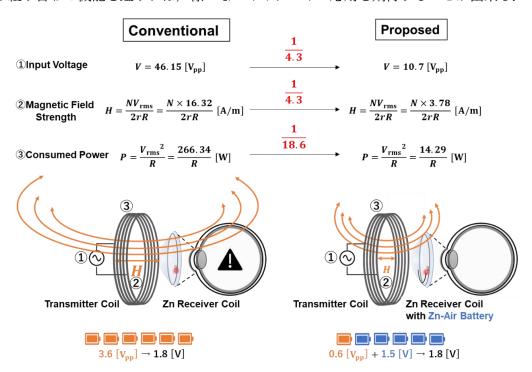


Figure 3.23 Power management comparison of the conventional WPT system and the hybrid power source.

3.3.3 生体適合性の検証

本章で開発したハイブリッド電源が眼球に与える生体影響を評価する。まずは、涙液にお ける卑金属の溶解に関して考察する. 人体における1日のミネラル摂取量は, 亜鉛が15 mg, マグネシウムが 350 mg となっているが[23]. 本実験で使用したアノード電極の質量は, 亜 鉛が 2.11 mg,マグネシウムが 0.51 mg,AZ31 が 0.52 mg であり,摂取量の上限値を圧倒 的に下回っていることが分かる. しかしながら, 涙液からの卑金属摂取に関する詳しい知見 は存在しないため, 現時点では, 眼球の安全性を正確に判断することはできないと結論付け た.次に,LED 点灯実験におけるデバイスの熱特性について議論する.電気抵抗のある導 体に電流を流した場合,ジュール熱による発熱は避けられず,従って,眼球への熱影響を評 価する必要がある. ここで, コンタクトレンズ型ハイブリッド電源を豚の眼球上で駆動させ たときの熱特性をサーモグラフィにより撮影した.時間経過ごとにワイヤレス給電を ON/OFF した場合の熱分布図と写真を Figure 3.24 に示す.この図より,ワイヤレス給電を 60 秒続けた場合, LED チップ付近の温度が 25~30 ℃に上昇したことが分かる. しかしな がら、その後すぐにコンタクトレンズ型ハイブリッド電源を取り外すと、 眼球表面における 熱上昇は観測されなかった. この結果から, ワイヤレス給電において電子素子周辺でのジュ ール熱は確かに存在するが、発熱の影響は眼球表面まで達していないと言える。これは、コ ンタクトレンズが保護層となり、電子素子からの熱影響を緩和していたためであると考察 可能である. 最後に, ハイブリッド電源駆動に伴う涙液の pH 変化について考える. 金属空 気電池のアノード極である亜鉛電極はイオン化傾向が高く, 亜鉛の溶解に伴う pH 変化が発 生すると予想される. そこで, 亜鉛電極周辺における溶液の pH 変化を視覚的に観測するた め, pH 指示薬の 1 つであるブロモチモールブルー: BTB 溶液 (80 μM) を用いた比較実験 を行った. 具体的な色調変化は以下の通りである: 黄色 (pH < 6), 緑色 (6 < pH < 7.6), 青色(pH > 7.6).ここで,比較のため,人口涙液と非緩衝液である Na₂SO₄(0.5 M)を用 意した.これらに BTB 溶液を添加し,ソフトコンタクトレンズに浸透させることで,亜鉛 空気電池の駆動に伴うアノード極の pH 変化を確認する(Figure 3.25).図より,人口涙液 上でハイブリッド電源を駆動した場合, 亜鉛電極周辺での pH 変化は見られなかった. これ は,人口涙液が緩衝液であり,水素イオン濃度の変化に対してロバスト性があるためである. 一方, Na₂SO₄上では, 亜鉛電極周辺で溶液色の変化が見られた (黄色から青色). これは, 亜鉛の溶解に伴う水素発生によって電極周辺の pH が上昇したためであると考察する.

以上,本項ではコンタクトレンズ型ハイブリッド電源を使用した場合の,摂取量,熱特性,pH変化について議論した.特に,眼球は脆弱な生体組織であり,メカニカル・マッチングや生体適合性を鑑みたデバイス開発が必要となる.本章で作製したハイブリッド電源は,そのような課題に対して,概ね有効なデバイス特性を示したと言える.

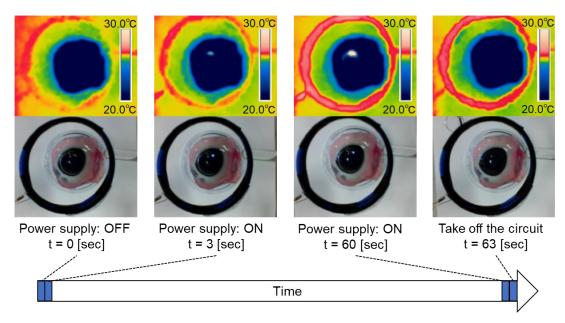


Figure 3.24 Thermal (top) and optical (bottom) images of the wirelessly powered LED on a pig eye during on/off cycling of the power supply.

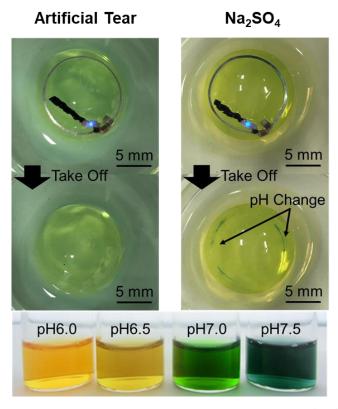


Figure 3.25 Images of the Zn receiver immersed in artificial tear (left) and unbuffered solution (right) with a pH indicator during LED illumination

3.4 おわりに

第 2 章で作製したワイヤレス給電システムは、誘電体上のウェット環境で安定的な無線 電力伝送を可能とする一方で、その効率は僅か10%以下であった。よって、レシーバー側 共振器で更なる電圧を確保するためには,トランスミッター側に印加する入力電力を増大 させる必要があった。しかしながら、これは同時に磁界強度の増加に繋がることから、生体 組織への高周波電磁波暴露に関する危険性を孕んでいた.従って,本章での目的は,生体に 与える磁界強度を抑制しつつ, 高電圧を確保することであり, それを実現する手法として, ハイブリッド・ウェアラブル電源を提案した.これは、ワイヤレス給電システムに金属空気 1 次電池を組み合わせた新しいウェアラブル電源であり, 生体という特殊な環境を活かした 電源出力の向上を実現した. 具体的には, 卑金属である亜鉛製アンテナをアノードとして併 用し、バイオカソードである酵素電極と溶液を介して接続することで、1.5 Vの直流電圧を 有する亜鉛空気電池を構築した.また,亜鉛製アンテナは 5.6 %の電力伝送効率で外部トラ ンスミッターより交流電圧を受電可能であるため,これら直流/交流電圧を加算することで, 最大電圧 $(0.5V_{pp} + 2.3 V)$ をコンタクトレンズ上で得ることに成功した. これは、トランス ミッター側共振器から発生する磁界強度を抑制しつつも,高電圧を供給する無線式電源で ある. よって、1.8 V の電圧を確保するという条件においては、トランスミッター側共振器 の磁界強度を 4.3 分の 1 に低減することができた. 加えて、亜鉛電極の溶解に伴う涙液の pH 変化や給電素子駆動に伴う熱発生を定量的に評価することができた.以上の実験結果よ り、本成果は体内・体表で高電圧を必要とするウェアラブル電源として応用可能であると考 える. このハイブリッド・ウェアラブル電源の特徴は, 亜鉛電極と空気極によって構成可能 である点にあり,眼球表面の涙を電解質溶液として使用するという独自性を持つ(Figure 3.26). また, 卑金属をワイヤレス給電用アンテナとして活用した先行事例がないことから, 本研究内容はアンテナ領域の研究に対しても有益な知見を提供するものであると言える.

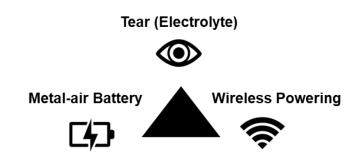


Figure 3.26 Concept of our hybrid power source composed of a wireless power transfer system and a Zn–air battery.

3.5 参考文献

- [1] Tianran Zhang, Zhanliang Tao, Jun Chen, "Magnesium-air batteries: from principle to application", *Mater. Horiz.*, 1, 2014.
- [2] Vincenzo Caramia, Benedetto Bozzini, "Materials science aspects of zinc–air batteries: a review", *Materials for Renewable and Sustainable Energy*, 3, 28, 2014.
- [3] Haiwu Zheng, Yunlong Zi, Xu He, Hengyu Guo, Ying-Chih Lai, Jie Wang, Steven L. Zhang, Changsheng Wu, Gang Cheng, Zhong Lin Wang, "Concurrent Harvesting of Ambient Energy by Hybrid Nanogenerators for Wearable Self-Powered Systems and Active Remote Sensing", ACS Appl. Mater. Interfaces, 10, 17, 2018.
- [4] Jun Chen, Yi Huang, Nannan Zhang, Haiyang Zou, Ruiyuan Liu, Changyuan Tao, Xing Fan, Zhong Lin Wang, Zhong Lin Wang, "Micro-cable structured textile for simultaneously harvesting solar and mechanical energy", *Nature Energy*, Vol. 1, Issue 10, 2016.
- [5] Kun Kelvin Fu, Zhengyang Wang, Jiaqi Dai, Marcus Carter, Liangbing Hu, "Transient Electronics: Materials and Devices", *Chem. Mater.*, 28, 11, 2016.
- [6] Lan Yin, Xian Huang, Hangxun Xu, Yanfeng Zhang, Jasper Lam, Jianjun Cheng, John A. Rogers, "Materials, Designs, and Operational Characteristics for Fully Biodegradable Primary Batteries", Vol. 26, Issue 23, 2014.
- [7] Young Jo Kim, Sang-Eun Chun, Jay Whitacreab, Christopher J. Bettinger, "Self-deployable current sources fabricated from edible materials", *Journal of Materials Chemistry B*, Issue 31, 2013.
- [8] Nouran Adly, Sabrina Weidlich, Silke Seyock, Fabian Brings, Alexey Yakushenko, Andreas Offenhäusser, Bernhard Wolfrum, "Printed microelectrode arrays on soft materials: from PDMS to hydrogels", *npj Flexible Electronics*, 2, 15, 2018.
- [9] Hyoyoung Jeong, Liu Wang, Taewoo Ha, Ruchika Mitbander, Xiangxing Yang, Zhaohe Dai, Shutao Qiao, Linxiao Shen, Nan Sun, Nanshu Lu, "Modular and Reconfigurable Wireless E-Tattoos for Personalized Sensing", Adv. Mater. Technol., Vol. 4, Issue 8, 2019.
- [10] Yingbo Li, Cheng Zhong, Jie Liu, Xiaoqiao Zeng, Shengxiang Qu, Xiaopeng Han, Yida Deng, Wenbin Hu, Jun Lu, "Atomically Thin Mesoporous Co3O4 Layers Strongly Coupled with N-rGO Nanosheets as High-Performance Bifunctional Catalysts for 1D Knittable Zinc-Air Batteries", Adv. Mater., Vol. 30, Issue 4, 2017.
- [11] Dr. Caofeng Pan, Zetang Li, Wenxi Guo, Prof. Jing Zhu, Prof. Zhong Lin Wang, "Fiber-Based Hybrid Nanogenerators for/as Self-Powered Systems in Biological Liquid", *Angewandte Chemie International Edition*, Vol. 50, Issue 47, 2011.

- [12] A. J. Bandodkar, S. P. Lee, I. Huang, W. Li, S. Wang, C.-J. Su, W. J. Jeang, T. Hang, S. Mehta, N. Nyberg, P. Gutruf, J. Choi, J. Koo, J. T. Reeder, R. Tseng, R. Ghaffari, J. A. Rogers, "Sweat-activated biocompatible batteries for epidermal electronic and microfluidic systems", *Nature Electronics*, Vol. 3, Issue 9, 2020.
- [13] 荒井創, "亜鉛-空気電池の開発動向", 資源と素材, Vol. 117, 2001.
- [14] Vincenzo Caramia, Benedetto Bozzini, "Materials science aspects of zinc–air batteries: a review", *Materials for Renewable and Sustainable Energy*, 3, 28, 2014.
- [15] S. Tsujimura, Y. Kamitaka, K. Kano, "Diffusion-Controlled Oxygen Reduction on Multi-Copper Oxidase-Adsorbed Carbon Aerogel Electrodes without Mediator", Fuel Cells, Vol. 7, Issue 6, 2007.
- [16] Naiguang Wang, Richu Wang, Yan Feng, Wenhui Xiong, Junchang Zhang, Min Deng, "Discharge and corrosion behaviour of Mg-Li-Al-Ce-Y-Zn alloy as the anode for Mg-air battery", *Corrosion Science*, Vol. 112, 2016.
- [17] Sijie Yin, Zewen Jin, Takeo Miyake, "Wearable high-powered biofuel cells using enzyme/carbon nanotube composite fibers on textile cloth", *Biosensors and Bioelectronics*, Vol. 141, 2019.
- [18] N Kallay, Z Dojnović, A Cop, "Surface potential at the hematite-water interface", *J Colloid Interface Sci.*, Vol. 286, Issue 2, 2005.
- [19] B. Zaid, S. Aeiyach, P.C. Lacaze, H. Takenouti, "A two-step electropolymerization of pyrrole on Zn in aqueous media", *Electrochimica Acta.*, Vol. 43, 1998.
- [20] J. Petitjean, J. Tanguy, J. C. Lacroix, K. I. Chane-Ching, S. Aeiyach, M. Delamar, P. C. Lacaze, "Interpretation of the ultra-fast electropolymerization of pyrrole in aqueous media on zinc in a one-step process: The specific role of the salicylate salt investigated by X-ray photoelectron spectroscopy (XPS) and by electrochemical quartz crystal microbalance (EQCM)", Journal of Electroanalytical Chemistry, Vol. 581, Issue 1, 2005.
- [21] S Reinauer, A Neusser, G Schauf, E Hölzle, "Iontophoresis with alternating current and direct current offset (AC/DC iontophoresis): a new approach for the treatment of hyperhidrosis", *British Journal of Dermatolog*, Vol. 129, Issue 2, 1993.
- [22] Keith Christopher, Anuj Chauhan, "Delivery of ionic molecules to anterior chamber by iontophoretic contact lenses", *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, Vol. 140, 2019.
- [23] Christopher J. Bettinger, "Materials Advances for Next-Generation Ingestible Electronic Medical Devices", *Trends in Biotechnology*, Vol. 33, Issue 10, 2015.

第4章 酵素電極を用いたパッシブ型バイオセンサ

4.1 はじめに

前章までは、バイオデバイス向けの電源開発について、磁界共鳴結合を基盤としたワイヤ レス給電システムの開発を行った. 一方, 本章からは生体情報の無線計測を目的としたバイ オセンシング・システムを開発する. バイオデバイスの使用目的は, 生体情報の計測と集積 にあり、得られた情報を基にした健康管理や先制医療に向けた取り組みが世界中で進んで いる. とりわけ、生化学情報 (バイオマーカー) の定量化は、POCT (Point of Care Testing) に欠かせないない技術基盤であり、その実装においては、生体が持つ特異的な物質認識機能 を応用し、引き起こされた物理変化を電気信号に変換する必要がある.これらは、分子認識 部と信号変換部(トランスデューサ)と呼ばれ、バイオセンサの主たる構成要素である[1] (Figure 4.1). 分子認識部には生体関連物質(酵素・微生物・抗体など)が挙げられ、酵素 であれば基質、抗体であれば抗原を認識し、特定の反応を進める作用を持つ、一方、トラン スデューサは、分子認識部にて発生した反応(電気化学・光・熱など)を電気信号に変換す る機能を持つ. このように、バイオセンサの実装には、検出対象やデバイス規格に合わせた 適切な分子認識部/トランスデューサを選定する必要がある. ここで, 医療分野におけるバ イオセンサには、電気化学的手法が有効であり、生化学物質との化学反応によって発生した 信号を電流または電位に変換する仕組みが求められる.他方,バイオデバイスの IoMT 化 を試みる場合、計測情報の外部出力および集積は数値解析を進める上での重要なポイント である. 特に, 体内埋め込み型や脆弱な生体組織表面で駆動するデバイスにおいては, 使用 者への負担軽減が望まれるため、既存の計測ワイヤに代わる新たな無線情報通信機能が必 要となる. このような背景のもと, 本研究では体液に含まれる生化学情報の無線計測を目的 とした電気化学式バイオセンサを作製する. 本章では、まずバイオデバイス向け無線情報通 信手法について概説した後、酵素電極を利用したバイオセンシング、およびその無線化につ いて開発内容をまとめる.最後に、体液中生化学物質(涙中グルコース、血中ラクテート) のワイヤレス計測について詳細を述べる.

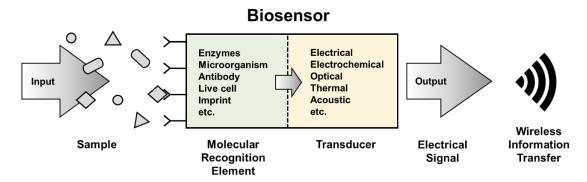


Figure 4.1 Configuration of biosensors composed of a molecular recognition element, a transducer, and a wireless information transfer unit.

4.1.1 無線情報通信

一般的に,無線通信の方法はアクティブ型とパッシブ型に分類可能であり,代表的な通信 規格として Bluetooth, Zigbee, RFID (Radio Frequency Identifier), NFC (Near Field Communication), 共振型アンテナが挙げられる (Table 4.1). これらは, センシング用途や 通信距離によって使い分けがなされており、本章で作製するバイオセンサにおいても適当 な通信方式を選定する必要がある. まず、アクティブ型の Bluetooth と Zigbee は、2.4 GHz 帯の電波を利用した遠距離無線通信用の通信規格である. よって, パッシブ型の通信方式と 比べて、遠距離(10-100m)でのデータ通信が可能となる。一方、パッシブ型の通信方式で は、読み取り機が近づいた場合のみデータ通信が行われるため、通信距離は比較的短く、持 続的な通信に不向きであるという欠点を持つ. しかしながら, パッシブ型の電子タグには IC 駆動用の電源を搭載する必要がないため、コスト面での優位性を示す.また RFID は,一度 に複数のタグを読み取ることができるため,資材管理に利用される場合が多く,無人レジや 倉庫での在庫確認が導入例として挙げられる.次に,この RFID に属する NFC について説 明する.動作周波数は 13.56 MHz であり、電磁誘導を利用した通信規格である.従って、 通信距離は数 cm 程度に留まるが, 安全なデータ転送が可能であることから, 非接触型決済 やデータ共有などに利用されている. このような NFC 規格はバイオデバイスにも応用可能 であり、汗に含まれる生化学物質やバイタルサインの無線計測などが応用例として報告さ れている[3-6]. しかしながら、これらの実現には IC チップの導入が必須であり、バイオデ バイスへの搭載を考えた場合、メカニカル・マッチングや生体適合性に関する諸課題を解決 する必要がある. そこで,現状多くの無線式バイオデバイスでは, 共振型アンテナが利用さ れている. これは, シンプルな LCR 共振回路: インダクタンス (L), キャパシタンス (C), レジスタンス (R) により実装可能であり、作製プロセスやコストを大幅に低減できるとい うメリットを持つ. また, 研究段階にある試作機においては, アンテナ特性の可変性や自由 度が高い方式が好ましい. 以上の理由より, 本研究で開発するバイオデバイスの通信方式に は共振型アンテナが適当であると判断した.

Table 4.1 Characteristics of various wireless information transfer methods.

	Active	е Туре	Passive Type			
	Bluetooth	Zigbee	RFID	NFC	Resonant Antenna	
Power Source	Battery	Battery	Battery-free	Battery-free	Battery-free	
Operating Frequency	2.4-5 GHz	868 MHz 915 MHz 2.4 GHz	120-140 kHz 13.56 MHz 868-956 MHz	13.56 MHz	Depending on the type of antenna	
Distance Range	10-100 m	10-100 m	< 15 m	< 5 cm	Frequency dependent	
Power Consumption	Medium	Medium	Very low	Low	Very low	
Structure	IC	IC	IC	IC	LCR	

最後に、電子タグやセンサに記録されたデータを無線伝送するための仕組みについて概説する。無線情報通信の実現には変調技術が必須であり、変調とは搬送波に電気的な情報を付加するための手法である。具体的には、搬送波信号の振幅、周波数、位相を任意のタイミングで変化させることで変調信号を生成可能であり、これらは AM (Amplitude Modulation)、FM (Frequency Modulation)、PM (Phase Modulation)と呼ばれる(Figure 4.2)。こうして、タグ内で変調された信号はリーダー側でワイヤレスに読み取り可能であり、この信号に復調処理を施すことにより搬送波に乗せられたデータが解析可能となる。例えば、リーダーから RFID タグに送信された搬送波は、タグ内メモリに記録された情報に基づき負荷変調され、その変化を検出することで無線通信を実現している。この負荷変調には、リーダーとタグ間におけるインピーダンス整合が応用されており、タグ内負荷を"開放"、"短絡"、"整合(50 Ω)"と変化させたとき、搬送波は"同相で全反射"、"逆相で全反射"、"反射なし"という反射特性を得ることになる。このような変調手法は、RFID や NFC といった無線通信規格にて定義されており、デジタル変調方式と呼ばれる。一方で、これらを達成するためには複雑な回路設計や IC 製造技術が必要となる。よって本研究では、バイオセンサを搭載したLCR 共振器を用いることで、簡易的なアナログ変調を実現し、無線情報通信を達成する.

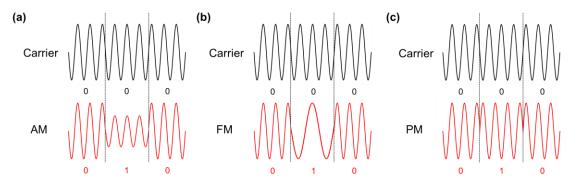


Figure 4.2 Three types of modulation methods, (a) AM, (b) FM, and (c)PM.

4.1.2 LCR 共振器を用いたパッシブ型バイオセンサ

LCR 共振器を応用したパッシブ型バイオセンサは、簡易的なアナログ変調による無線情報通信を可能とし、そのメカニズムは共振器内の電子素子変化:インダクタンス(L)、キャパシタンス(C)、レジスタンス(R)を応用したものである。よって、生体向けセンサに求められる機能は、検出対象(生体情報)の変化に伴った電子素子の特性変化であると言える。一般的に、検出対象である生体情報は以下の3つに分類可能である。生体電気信号(脳波、心電図、筋電図、皮質電図、網膜電図、眼電図)、生体物理信号(温度、圧力、歪、速度、振動)、生化学情報(糖度(グルコース)、乳酸(ラクテート)、尿素(ユリア)、タンパク質、アドレナリン、抗体、イオン)。ここで、検出対象に応じたリアクタンス素子(L/C)の変化は周波数変調(FM)を、レジスタンス素子(R)の変化は振幅変調(AM)を引き起こし、それらは読み取り器の反射係数変化(周波数変化を Δ F、振幅変

化を ΔA と定義)として無線計測可能となる(Figure 4.3).このような LCR 共振器を利用した生体向けのパッシブ型センサをいくつか紹介する(Figure 4.4):(a)グルコース/IOP計測用のコンタクトレンズ型デバイス[7],(b)神経電位計測用埋め込み型デバイス[8],(c)外傷状態の定量化デバイス[9],(d)歯に貼り付け可能なバクテリア計測デバイス[10],(e)生分解性を有する血流モニタリング用センサ[11],(f)生体吸収性を有する埋め込み型温度センサ[12],(g)体表貼り付け型汗センサ[13],(h)触覚計測用圧力センサ[14],(i)膀胱容量を計測する貼り付け型センサ[15].このように,パッシブ型バイオセンサは様々な生体情報計測に応用されており,その有効性が実証されている.加えて,電子素子自体に生分解性や柔軟性といった機能を付与する研究も進んでおり,身体に馴染むバイオデバイスの開発が進められている.

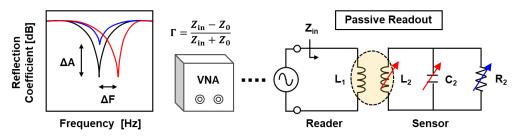


Figure 4.3 A concept of wireless readout with passive LCR resonators.

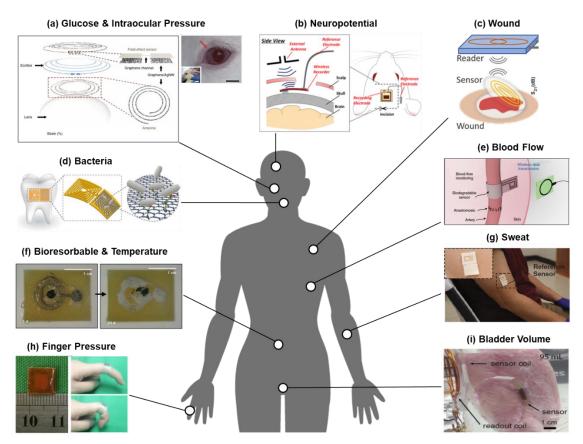


Figure 4.4 Application examples of LCR resonator based biosensors (modified from [7-15]).

4.2 酵素電極を用いたバイオセンサ

生体関連物質を利用するバイオセンサは、高い分子識別能力と生命科学への高い関心から、近年、特に注目の集まっている技術領域である。中でも、酵素を用いたバイオセンサは生体由来の材料で構成することができ、かつ特定の反応のみを選択的に触媒する基質特異性を有していることからライフサイエンス分野での応用が進んでいる。本節では、酵素を活用した電極を用いることで、生体触媒反応に基づく電気化学式バイオセンサを実装する。さらに、作製したバイオセンサを LCR 共振器と組み合わせることで、基質変化に伴う負荷変調を可能とするパッシブ型バイオセンサを開発する。

4.2.1 酵素の種類

酵素電極で用いられる酸化還元酵素は, 直接移動型である DET (Direct Electron Transfer) とメディエータ型である MET (Mediated Electron Transfer) に分類可能である. DET 型 は、その多くが酵素内に 2 つ以上の酸化還元中心を有しており、基質との触媒反応を担う 部分と電極との電子授受を担う部分が存在する[16] (Figure 4.5).そのため,酵素の吸着配 向が課題となっており、また DET 型酵素電極の実施例は非常に限られている。第三章で作 製した BOD(Bilirubin Oxidase)電極はこの DET 型酵素電極に該当する.一方,MET 型 酵素電極は,酸化還元反応に作用する2つの基質のうち,1つを電子伝達メディエータに置 換したものである.DET 型と比較すると多種多様な酵素に適応できるため,汎用性の高い 技術とされる. MET 型酵素電極の反応は、まず酵素が基質を酸化(還元)させると同時に メディエータを還元(酸化)させ、次に、メディエータが電極まで移動することにより電子 伝達が行われる. このように、電子伝達メディエータは電極と酵素の間を行き来する必要が あるため、電極へのメディエータ固定は特に重要なポイントである. 以上の特性を踏まえた 上で, 本節では MET 型酵素電極を用いた電気化学式バイオセンサを実装する. メディエー タには、岡山大学にて先行研究が進んでいたオスミウム配位ポリマー(Polyvinylimidazole-[Os(bipyridine)2Cl]) を利用し[17], グルコースおよびラクテートと反応する酵素電極を作 製・評価する.このオスミウム配位ポリマーは,アボット社の貼り付け型血糖値センサ (FreeStyleLibre) にも使用されており、in vivo 有効性も証明されている[18]. 従って、生 体向けバイオセンサとして使用できると結論付けた.

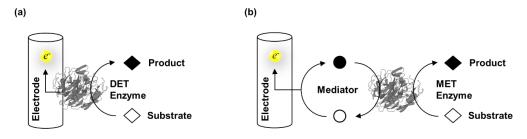


Figure 4.5 Reaction process of (a) DET-type and (b) MET-type bioanodes.

4.2.2 酵素電極の作製と評価

本項では酵素電極の作製方法についてまとめる。項(3.2.2)で作製した BOD 電極と同様に、触媒酵素を固定する電極素材にはカーボンファイバー(CF)を利用した。これは柔軟性をもった導電性素材であり、表面にカーボンナノチューブ(CNT)を結着させることで、比表面積が増大し、比較的多くの電荷がトラップ可能となる(酵素の高密度な固定を実現)。この電極表面にメディエータ(PVI-[Os(bpy) $_2$ Cl])を修飾し、その後、検出対象に応じた酵素を修飾することで、反応選択性を有する酵素電極が実現される。例えば、グルコースを検出する場合には GOD (Glucose Oxidase)を、ラクテートを検出する場合には LOD (Lactate Oxidase)を酵素として用いる。ここで、最終的に形成される酵素電極(GOD/LOD)のレイヤー構造を Figure 4.6 に示す。

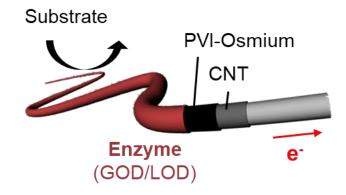


Figure 4.6 The schematic figure of a GOD/LOD bioanode.

以下に、具体的な GOD/LOD 電極の作製方法を示す.

- (1) CNT 溶液を、CF に滴下後、80°Cのオーブンで乾燥させる。その後、滴下と乾燥を3回繰り返す(レイヤー構造: CNT/CF)。
- (2) 作製した電極を蒸留水で洗い、余分な CNT を除去する.
- (3) 作製した電極を 1 mg/mL の PVI-[Os(bpy)₂Cl]を含んだ PBS 溶液 (0.1 M, pH=7.0) に浸し, 溶液温度を 4℃に保ちながら 2 時間攪拌する (レイヤー構造: PVI-[Os(bpy)₂Cl] /CNT/CF).
- (4) 作製した電極を PBS 溶液(0.1 M, pH=7.0)で 30 分間洗う.

<GOD の場合>

(5) 作製した電極を 4 mg/mL の GOD を含む PBS 溶液に浸し、溶液温度を 4℃に保ちながら、12 時間攪拌する (レイヤー構造: GOD/PVI-[Os(bpy)₂Cl]/CNT/CF).

<LOD の場合>

(5) 作製した電極を 1.5 mg/mL の LOD を含む PBS 溶液に浸し,溶液温度を 4℃に保ちながら,12 時間攪拌する (レイヤー構造:LOD/PVI-[Os(bpy)₂Cl]/CNT/CF).

作製した酵素電極の性能は電気化学的測定にて評価する。まず、電極の反応電位(酸化還元電位)を確認するため、サイクリックボルタメトリーを実施した。測定においてはポテンショスタットを用いた 3 電極方式を採用し、作用電極に酵素電極(GOD/LOD)を、参照電極に市販の Ag/AgCl を、対極に白金電極を接続した。また走査電位は-0.2~0.8 V とした。 Figure 4.7 は GOD 電極のサイクリックボルタモグラムであり、PBS 溶液(0.1 M、pH=7.0)中で、グルコース濃度を変化させたときの結果である。ここで、評価実験に用いる計測溶液については、8 mL の PBS 溶液に、高濃度グルコース溶液(0.5 M)を $1.6\,\mu$ L ずつ滴下し攪拌することで、任意のグルコース濃度($0~1.0\,\mu$ m)を調製した。グルコース濃度のレンジを $0~1.0\,\mu$ m に決定した理由については次項で述べるものとする。この図より、酸化反応は $0.1\,V$ 付近から始まっており、 $0.4~0.8\,V$ の間ではグルコース濃度の上昇に伴い、酸化電流が徐々に増加する様子が見て取れる。これより、Ag/AgCl に対して $0.4~0.8\,V$ の電位を印加することで、グルコースの濃度変化に伴う酸化電流の変化が得られることが分かった。

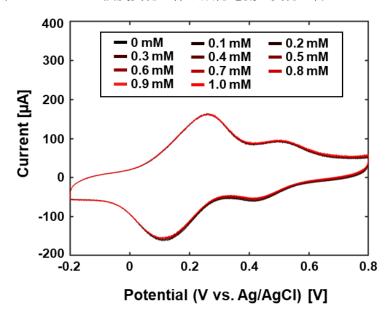


Figure 4.7 Cyclic voltammograms of glucose oxidation at the fixed glucose concentrations (0.1~0.6 mM).

次に、作製した GOD 電極について、グルコース濃度に起因した応答電流を確認すべく、アンペロメトリー法による計測を実施した。具体的には、GOD 電極と自作した Ag/AgCl 間に 0.8 V の電圧を印加し、グルコース濃度を $0\sim1.0$ mM に変化(200 秒間隔)させたときの GOD 電極における酸化電流値を計測する(Figure 4.8)。このとき、各濃度における電流の平均値・標準偏差(100 秒間)を算出した結果を挿入図に示す(Figure 4.8 inset)、これらの結果より、各濃度における電流の平均値は以下の通りであった:5.89 μ A(0 mM)、7.64 μ A(0.1 mM)、9.12 μ A(0.2 mM)、10.75 μ A(0.3 mM)、12.50 μ A(0.4 mM)、14.33 μ A(0.5 mM)、16.24 μ A(0.6 mM)、18.22 μ A(0.7 mM)、19.76 μ A(0.8 mM)、21.68 μ A(0.9 mM)、23.21 μ A(1.0 mM)、以上より、GOD 電極はグルコース濃度の変化に対して 1.57

 μ A/0.1 mM のセンサ感度を有し、 $0\sim1.0$ mM のレンジでは線形増加を示すことが分かった。このセンサ特性を利用することで、溶液中のグルコース計測が可能であると言える。一方で、体液中にはグルコース以外にも様々な代謝物が含まれており、電極反応への影響を確認する必要がある。本実験では、グルコースの他にユリアとラクテートを計測溶液に添加し、GOD 電極の酸化電流を計測した(Figure 4.9)。この図より、作製した GOD 電極の電流値は、ユリアやラクテートが添加された場合は変化せず、グルコースが添加された場合のみ上昇することが分かる。これは GOD の基質特異性を示しており、グルコースセンサとしての選択性の高さを表している。

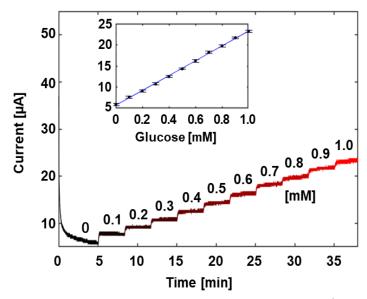


Figure 4.8 Amperometric measurement of glucose oxidation at 0.8 V (vs. Ag/AgCl) at the fixed glucose concentrations (0.1~0.6 mM). Oxidized current vs. concentration is depicted (inset).

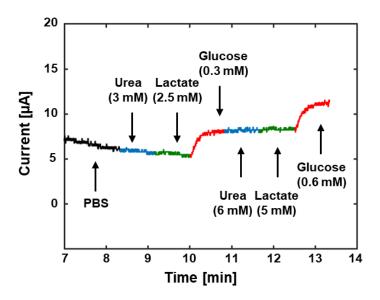


Figure 4.9 Amperometric response of the GOD sensor to glucose (0.3 and 0.6 mM), showing negligible interference from urea (3 and 6 mM), and lactate (2.5 and 5 mM).

同様の手順で LOD 電極の性能評価を行った。Figure 4.10 は LOD 電極のサイクリックボルタモグラムであり,PBS 溶液($0.1\,\mathrm{M}$, pH =7.0)中で,ラクテート濃度を変化させたときの結果である。ここで,LOD 電極の評価実験に用いる計測溶液については, $4\,\mathrm{mL}$ の PBS 溶液に,高濃度ラクテート溶液($0.5\,\mathrm{M}$)を $4\,\mathrm{\mu L}$ ずつ滴下し攪拌することで,任意のラクテート濃度($0\sim4.0\,\mathrm{mM}$)を調製した。ラクテート濃度のレンジを $0\sim4.0\,\mathrm{mM}$ に決定した理由については次項で述べる。この図より,ラクテートの濃度変化に伴う酸化電流の変化は $0.4\sim0.8\,\mathrm{V}$ 付近で確認することができた。

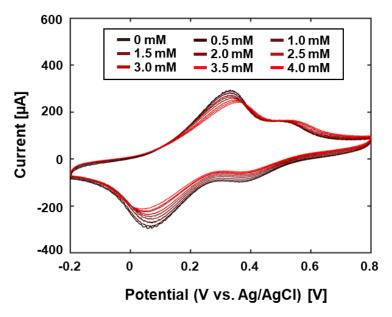


Figure 4.10 Cyclic voltammograms of lactate oxidation at the fixed lactate concentrations (0~4.0 mM).

次に、作製した LOD 電極について、アンペロメトリー法による計測を実施した。実験方法としては、LOD 電極と自作した Ag/AgCl間に $0.8\,\mathrm{V}$ の電圧を印加し、ラクテート濃度を $0{\sim}4.0\,\mathrm{mM}$ に変化 (200 秒間隔) させたときの LOD 電極における酸化電流特性を計測する (Figure 4.11). このとき、各濃度における電流の平均値・標準偏差 (100 秒間) を算出した結果を挿入図に示す(Figure 4.11 inset). ここで、各濃度における電流の平均値は以下の通りであった: $4.36\,\mu\mathrm{A}$ ($0\,\mathrm{mM}$)、 $8.67\,\mu\mathrm{A}$ ($0.5\,\mathrm{mM}$)、 $12.56\,\mu\mathrm{A}$ ($1.0\,\mathrm{mM}$)、 $15.59\,\mu\mathrm{A}$ ($1.5\,\mathrm{mM}$)、 $17.89\,\mu\mathrm{A}$ ($2.0\,\mathrm{mM}$)、 $19.81\,\mu\mathrm{A}$ ($2.5\,\mathrm{mM}$)、 $21.77\,\mu\mathrm{A}$ ($3.0\,\mathrm{mM}$)、 $23.48\,\mu\mathrm{A}$ ($3.5\,\mathrm{mM}$)、 $24.96\,\mu\mathrm{A}$ ($4.0\,\mathrm{mM}$). 上記の結果より、ラクテートが $0{\sim}1.0\,\mathrm{mM}$ のレンジにおいては、濃度変化に伴う酸化電流が線形増加傾向を示すのに対して、 $1.0\,\mathrm{mM}$ 以降の濃度では、センサ感度が徐々に減少することが分かった。これは、酵素が基質に対して一定数の結合部位を持っていることを表しており、すべての結合部位を占有されると反応速度の増加が飽和するためである。このような酵素電極(LOD)の非線形性を評価するために、ラクテート濃度を $0{\sim}10\,\mathrm{mM}$ に変化させたときの電流変化を計測した (Figure 4.12). このグラフについて、ミカエリス・メンテンの式 (4.1) によるフィッティングを施すと、見かけのミカエリス・

メンテン定数 (K_M) は 1.97 mM であった.ここで,購入元(TOYOBO)の特性シートでは, K_M は 1 mM であることを鑑みると,酵素電極の作製プロセス(CNT/酵素修飾)に起因する性能劣化が起こったと考えられる.しかしながら,他グループの LOD センサ($K_M=1.75$ mM)と比較した場合[19],概ね同等の電子授受性能が得られており,よって電極上に固定された酵素の活性が維持できていると結論付けた.

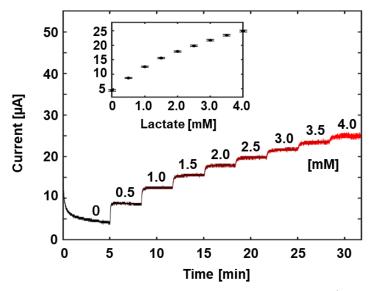


Figure 4.11 Amperometric measurement of lactate oxidation at 0.8 V (vs. Ag/AgCl) at the fixed lactate concentrations (0~4.0 mM). Oxidized current vs. concentration is depicted (inset).

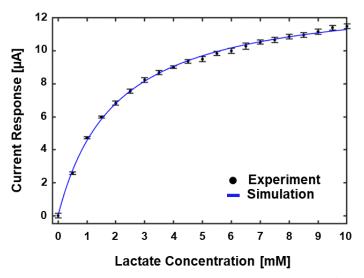


Figure 4.12 Amperometric measurement of lactate oxidation at 0.8 V (vs. Ag/AgCl) at the fixed lactate concentrations (0~10 mM). Blue line shows the fitting Michaelis-Menten curve.

$$I = \frac{I_{\text{max}}c}{c + K_{\text{M}}} \tag{4.1}$$

以上より、作製した LOD 電極は溶液中のラクテート計測に応用可能であると言える. 一方、体液中にはラクテート以外にも様々な代謝物が含まれており、電極反応への影響を確認する必要がある. 本実験では、ラクテートの他にグルコースとユリアを PBS に添加し、LOD電極の酸化電流を計測した(Figure 4.13). 図より、作製した LOD電極の電流値は、グルコースやユリアが添加された場合は変化せず、ラクテートが添加された場合のみ上昇することが分かる. これは LOD の基質特異性を示しており、ラクテートセンサとしての選択性の高さを表している.

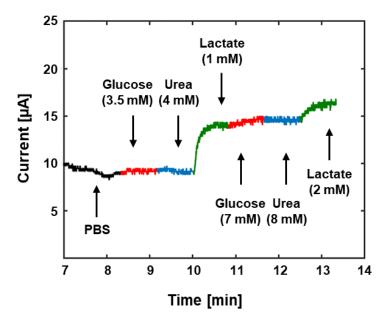


Figure 4.13 Amperometric response of the LOD sensor to lactate (1 and 2 mM), showing negligible interference from urea (4 and 8 mM), and glucose (3.5 and 7 mM).

最後に、本節では 2 種類の酵素電極(GOD/LOD)を用いた電気化学測定を実施し、基質(グルコース/ラクテート)濃度に伴う酸化電流の変化を確認することができた。また、ベースとなる電極(PVI- $[Os(bpy)_2Cl]/CNT/CF$)に適切な酵素を修飾することで、検出対象に対して基質特異性をもったバイオセンサの構築が可能であることを示した。この結果から、本研究で用いた酵素電極の汎用性の高さが窺える。次節では、これら酵素電極を搭載したパッシブ型バイオセンサについてまとめる。

4.3 パッシブ型バイオセンサ

本節では、前節で作製した酵素電極を用いて、パッシブ型バイオセンサを構築し、検出した生化学情報をアンテナの振幅変調として変換する方法を示す。まず、GOD 電極を用いた実施例として涙中グルコース濃度を計測するスマートコンタクトレンズを作製する。スマートコンタクトレンズを作製する。スマートコンタクトレンズを用いた生化学物質の計測は最も開発が進む分野であり、その始まりは、2014 年の Google によるグルコース無線計測の概念実証に端を発する[20]。しかしながら、近年(2021 年現在)、血中グルコース濃度と涙中グルコース濃度の相関性欠如を理由として、Google レンズの開発は打ち止めとなっている。一方、これらの強い相関性は複数の論文で報告されており、未だ議論の対象となっている[21-24]。ここで、涙中グルコースを用いた具体的な疾病診断対象として糖尿病が挙げられる。ある研究結果によれば、健常者と糖尿病患者の涙液に含まれるグルコース濃度(平均値とレンジ)には大きな違いがあることが分かっており(健常者: $0.16\pm0.03\,\mathrm{mM}$ ($0.1\sim0.3\,\mathrm{mM}$)、糖尿病患者: $0.35\pm0.04\,\mathrm{mM}$ ($0.15\sim0.6\,\mathrm{mM}$))、涙中グルコース濃度の計測によって糖尿病を診断することは可能であると言える[22]。よって、本研究で作製するパッシブ型グルコースセンサは、スマートコンタクトレンズへの応用を見据え、その検出範囲を $0.1\sim0.6\,\mathrm{mM}$ とする.

次に、LOD電極を用いた実施例として血中ラクテート濃度を計測する皮下埋植型デバイスを作製する. 血中ラクテートをバイオマーカーとする疾病のひとつに敗血症がある. これは、感染症がきっかけとなり発症する二次的な症状であり、感染症の原因となる細菌が全身に広がることで、重大な臓器障害を引き起こすことが明らかとなっている. 特に、血中ラクテート濃度が 2.0 mM を上回るにつれ、患者の致死率が線形増加するという報告がある[25]. よって、敗血症が疑われる患者にとって、血中ラクテートのモニタリングと閾値(2.0 mM)を越えた場合の注意喚起は、迅速な処置を施す上での重要な課題であると言える. そこで、本研究ではパッシブ型ラクテートセンサを試作し、無線式埋植型デバイスとしての利用を提案する. また、上述した診断基準より、血中ラクテートの検出範囲は 0~4.0 mM とする.

4.3.1 システム設計と実装

Figure 4.14 に本章で作製するパッシブ型バイオセンサの概要図を示す。項(4.1.2)で取り上げたように、本研究では LCR 共振器を基盤として、基質(涙中グルコース/血中ラクテート)の濃度変化に伴った負荷変調を実現する。変調因子として機能する化学抵抗器(R)は、2 電極式の電気化学測定器により実現可能であり、その抵抗値は酵素電極側の酸化電流値によって決定する。具体的な動作原理を以下に示す。化学抵抗器は、整流回路(ブリッジダイオード/平滑化コンデンサ)と酵素電極および自作 Ag/AgCl により構成される。まず、LC 共振器にて外部から受電された AC 電圧は、整流回路によって DC 電圧に変換される。その後、平滑化コンデンサ(C_{smooth})は、電荷の蓄積により電圧源として機能し、酵素電極と対極 (Ag/AgCl) 間に約 $0.8\,V$ の DC 電圧を印加する。このとき、酵素電極上ではアンペ

ロメトリー法によって酸化電流が得られる。これらの回路動作を LC 共振器側から見た場合,基質濃度に応じた可変化学抵抗器として捉えることができる。次に,上記の機能を有するパッシブ型バイオセンサ実装のため,各電子素子のパラメータを以下のように設計した: 1 巻き銅コイル($L=32\,\mathrm{nH}$,コイル直径 $12\,\mathrm{mm}$),共振用コンデンサ($C_\mathrm{res}=100\,\mathrm{pF}$),ブリッジダイオード(BAS4002A-RPP, $C_\mathrm{diode}=2{\sim}5\,\mathrm{pF}$),平滑化コンデンサ($C_\mathrm{smooth}=22\,\mathrm{\mu F}$)。ここで,パッシブ型バイオセンサの等価回路図を Figure 4.15 に示す.この図より,整流回路部分は C_diode を用いた等価回路で表現可能であることが分かる.以上より,本デバイスをLC 共振回路と捉えることができるため,式(4.2)を用いて共振周波数が導出可能となる($f=88.15\,\mathrm{MHz}$).

$$f = \frac{1}{2\pi\sqrt{LC}} \tag{4.2}$$

上述した電子素子を用いて作製したパッシブ型バイオセンサの外観図を Figure 4.16 に示す. ここで各電子素子(コイル, コンデンサ, ブリッジダイオード, Ag/AgCl 電極)の接着にはハンダを用いた. また, 酵素電極の接着については Ag ペーストを使用した. このパッシブ型バイオセンサの厚みは 1 mm 以下であり, 例えば, ポリジメチルシロキサン (PDMS) に包含することもできるため, コンタクトレンズ型デバイスとして応用可能である (Figure 4.17). また, 酵素電極は検出対象に応じて, GOD あるいは LOD を選択することができるため, 汎用性の高いバイオセンサが実装可能である.

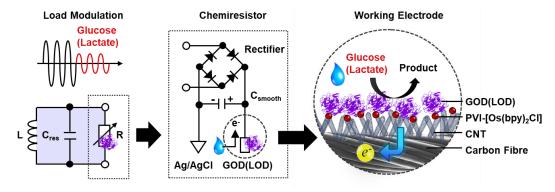


Figure 4.14 Configuration of our passive biosensor based on a LCR resonator.

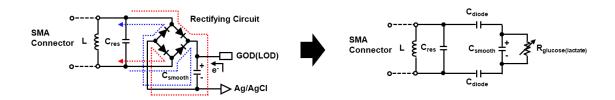


Figure 4.15 Circuit transformation of the chemiresitor element.

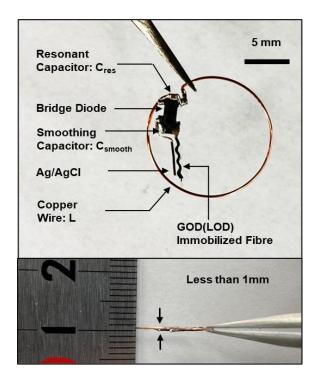


Figure 4.16 Photographs of our passive biosensor taken from the front (top) and the side (middle).

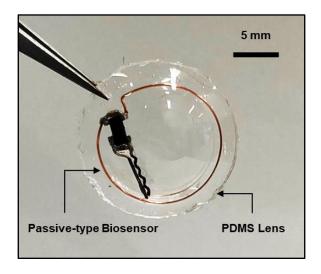


Figure 4.17 Photographs of our passive biosensor embedded in a PDMS lens.

4.3.2 性能評価

本項では LCR 共振器をベースとしたパッシブ型バイオセンサの高周波特性を評価する. Figure 4.18 は GOD 電極を搭載したパッシブ型グルコースセンサの入力インピーダンス実部(Re(Z_{in}))であり,グルコース濃度を $0.1\sim0.6$ mM に変化させたときの計測結果(周波数掃引回数 5 回における平均値)を示している.また,各濃度における共振時のRe(Z_{in})をプロットした結果を挿入図に示す(周波数掃引回数 5 回における平均値と標準偏差).ここで,各濃度変化に伴うRe(Z_{in})の平均値は以下の通りであった:1085 Ω (0.1 mM),1084 Ω (0.2 mM),1082 Ω (0.3 mM),1080 Ω (0.4 mM),1079 Ω (0.5 mM),1077 Ω (0.6 mM).これは,グルコース濃度に伴った酸化電流の増加,即ち化学抵抗値の減少を意味しており,センサ感度は 1.6 Ω /0.1 mM である.一方,本実験においてグルコース濃度を変化させたとき,パッシブ型グルコースセンサの共振周波数は 1.6 1.

次に、Figure 4.19 に LOD 電極を搭載したパッシブ型ラクテートセンサの入力インピーダンス実部(Re(Z_{in}))を示す.これは、ラクテート濃度を $0\sim4.0$ mM に変化させたときの計測結果(周波数掃引回数 5 回における平均値)である.また、各濃度における共振周時の Re(Z_{in})をプロットした結果を挿入図に示す(周波数掃引回数 5 回における平均値と標準偏差).ここで、各濃度変化に伴うRe(Z_{in})の平均値は以下の通りであった: $1081~\Omega~(0~mM)$, $1068~\Omega~(1.0~mM)$, $1061~\Omega~(2.0~mM)$, $1055~\Omega~(3.0~mM)$, $1052~\Omega~(4.0~mM)$.項(4.4.2)で考察したように,LOD 電極の電流特性に関しては濃度変化に伴う線形性が見られない.しかしながら、各濃度変化に起因した抵抗値の減少は確認することができた.一方、本実験において共振周波数は $88.17\sim88.14~MHz$ の範囲で変化したが,この共振周波数変化は Re(Z_{in})の振幅変化に比べて微弱である.以上より,ここで作製したパッシブ型ラクテートセンサは,ラクテート濃度の変化によって振幅変調(AM)を実現していると言える.

最後に、本節では糖尿病診断用のスマートコンタクトレンズと敗血症診断用の皮下埋植型デバイスに応用可能なパッシブ型バイオセンサを開発した。従来、酵素電極と Ag/AgClを用いた 2 極式の電気化学測定では定電圧の印加が必要であり、ポテンショ・ガルバノスタットを用いた計測が一般的であった。本研究では、当該システムを簡易的ではあるが、並列型 LC 共振器内に実装することに成功し、電気化学測定部分が化学抵抗器として機能することを突き止めた。さらに、本デバイスの入力インピーダンスを基質濃度の異なる溶液中で計測することで、LCR 共振器の振幅変調(AM)が実現可能であることを示した。

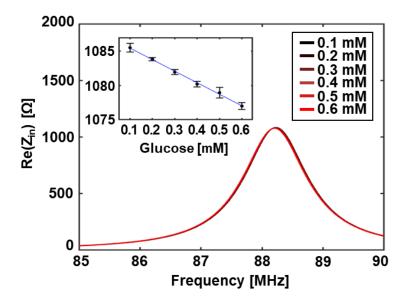


Figure 4.18 Real part of the input impedance $Re(Z_{in})$ (vs. frequency) of passive glucose sensor at the fixed glucose concentrations (0.1~0.6 mM). $Re(Z_{in})$ vs. concentration is depicted (inset).

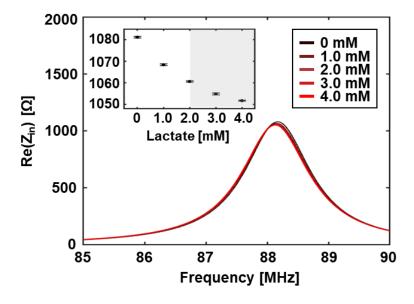


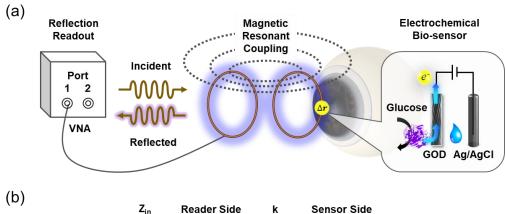
Figure 4.19 Real part of the input impedance $Re(Z_{in})$ (vs. frequency) of passive lactate sensor at the fixed lactate concentrations (0~4.0 mM). $Re(Z_{in}) \text{ vs. concentration is depicted (inset)}.$

4.4 磁界共鳴結合によるワイヤレス・バイオセンシング

前節までに作成したパッシブ型バイオセンサは、基質の濃度変化により化学抵抗器の値を変化させ、結果として共振器型アンテナの振幅変調(AM)を実現するものであった。本節では、この変調特性をワイヤレスに読み取ることを目的として、磁界共鳴結合を用いた無線情報計測系を構築する(Figure 4.20)。これは、パッシブ型グルコースセンサ(右側)とリーダー(左側)によって構成され、リーダー(LCR 共振器)は SMA コネクタを介し、ネットワークアナライザのポート 1 に接続される。ここで、ネットワークアナライザ上で観測される反射係数 (Γ) はリーダーに与えた進行波に対する後退波の信号比を表しており、以下の式を用いることで計算可能である(Γ の詳細は付録 A を確認)。

$$\Gamma = \frac{Z_{\rm in} - Z_0}{Z_{\rm in} + Z_0} \tag{4.3}$$

このとき、 $Z_{\rm in}$ は入力インピーダンス、 Z_0 はネットワークアナライザおよび同軸ケーブルの抵抗値($50~\Omega$)を示す。第 $2\cdot 3$ 章では、この反射係数(S_{11})や伝達係数(S_{21})を用いて、ワイヤレス給電システムを評価していたが、本章以降では高周波回路の本質的理解を深めるために、入力インピーダンス ($Z_{\rm in}$)を用いたワイヤレス計測系の解析を行う。Figure 4.20bは本システムの等価回路図であり、ネットワークアナライザが直接読み取る被試験対象はリーダーであることが分かる。ここで、リーダーは高周波磁界によりパッシブ型バイオセンサと結合しており、結合係数 (k)を介した 1 つの回路として捉えることが出来る。従って、パッシブ型バイオセンサで発生した抵抗値変化(Δr)は、間接的に $Z_{\rm in}$ に影響を及ぼすと言える。以上が、磁界共鳴結合を利用したワイヤレス計測のメカニズムである。



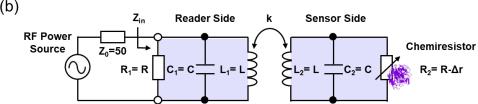


Figure 4.20 (a) Schematic illustration and (b) circuit diagram of our wireless readout system based on LCR resonant coupling.

次に、Figure 4.20 に示した磁界共鳴結合系を実験的に構築し、入力インピーダンスを計 測した.このとき,リーダー/センサ間の伝送距離は 14.9 mm に設定した.伝送距離を 14.9 mm に決定した理由としては、次章で取り上げる無線計測との比較対象として本実験結果 を利用するためである. ここで、上記の設定で入力インピーダンス実部 $(Re(Z_{in}))$ を計測し た結果を Figure 4.21 に示す.これは,前項での実験と同様,グルコース濃度を 0.1~0.6 mM に変化させたときの結果(周波数掃引回数5回における平均値)を示している. また, 各濃 度における共振時のRe(Z_{in})をプロットした結果を挿入図に示す(周波数掃引回数 5 回にお ける平均値と標準偏差). ここで、各濃度変化に伴うRe(Z_{in})の平均値は以下の通りであった: 545 Ω (0.1 mM), 546 Ω (0.2 mM), 547 Ω (0.3 mM), 548 Ω (0.4 mM), 549 Ω (0.5 mM), 550 Ω (0.6 mM). この結果より, センサ側で発生した化学抵抗器の微弱な抵抗変化 が、磁界共鳴結合を介して、リーダー側で読み取り可能であることが実証された。また、そ のセンサ感度は $1.0~\Omega/0.1~\text{mM}$ であった。ここで、センサ感度がパッシブ型バイオセンサ 単体(1.6 Ω/0.1 mM)と比べて低下した理由については次章で述べるものとする.次に, 本実験で得られたRe(Z_{in})の周波数特性が共振周波数を軸に分岐している点について解説を 加える. 一般的に, 共振器同士の伝送距離は結合係数に関係しており, 共振器間の相互イン ダクタンスに影響を及ぼす. ここで, 相互インダクタンスの変化はインピーダンス虚部成分 (Im(Z_{in}))の変化を招くため、伝送距離が短縮し続けた場合、磁界共鳴結合系の共振周波 数は1つから2つに分裂する. これを強結合状態と呼ぶ.

以上,本節ではリーダーとパッシブ型グルコースセンサを磁界共鳴結合させることによって,センサ側で検出したグルコース濃度を無線計測することに成功した.

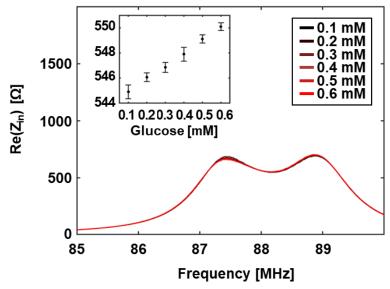


Figure 4.21 Real part of the input impedance $Re(Z_{in})$ (vs. frequency) of the reading resonator coupled with the passive glucose sensor at the fixed glucose concentrations (0.1~0.6 mM). $Re(Z_{in})$ vs. concentration is depicted (inset).

4.5 おわりに

本章では体液に含まれる基質濃度変化を電気化学的に計測可能な化学抵抗器を作製し、LC 共振器に組み込むことでパッシブ型バイオセンサを構築した。また、基質濃度変化に伴う負荷変調を利用し、ワイヤレスな基質濃度計測を実現した。加えて、今回開発したパッシブ型バイオセンサは、酵素電極を GOD から LOD に変更しても同様の振幅変調特性が得られることから、検出対象である基質や濃度に合わせたデバイスの汎用化が期待できる。Table 4.2 は、人間の体液(血液/涙/汗)に含まれる生化学物質(グルコース/ラクテート/ユリア/ナトリウム/カリウム/カルシウム/マグネシウム/塩素)の濃度と診断可能な疾病についてまとめた表である[26-36]。この表より、各体液が含有する生化学物質の種類は多く、それぞれが既に効果的なバイオマーカーとして疾病診断に用いられていることが分かる。従って、検出対象や濃度レンジに合わせて生体触媒を変更するだけでバイオセンシングが可能となる本研究成果は応用範囲が広いと言える。また、本章で開発したパッシブ型バイオセンサは、シンプルな回路設計により実現可能であり、コストや消費電力の面で IC チップを利用したバイオセンサに対して優位である。

Table 4.2 Summery of biochemicals in human body fluids.

Analytes	Blood		Tear		Sweat		Diagnosis
	Conc. (mM)	Ref.	Conc. (mM)	Ref.	Conc. (mM)	Ref.	Application
Glucose	4.9-6.9	[26]	0.1-0.6	[27]	0.02-0.6	[28]	Diabetes, Hyper/hypo Glycaemia
Lactate	0.6-2.0	[29]	1-5	[30]	1-25	[31]	Sepsis, Ischemia, Cancer
Urea	1.7-8.3	[32]	6	[33]	1.8-46	[34]	Uraemia, Renal dysfunction
Na⁺	130-145	[35]	120-165	[35]	66.3 ± 46	[36]	Hyper/hyponatremia
K⁺	3.5-5.0	[35]	20-42	[35]	9.0 ± 4.8	[36]	Ocular disease
Ca ²⁺	2.0-2.6	[35]	0.4-1.1	[35]	4-60	[36]	Hyper/hypo Calcemia
Mg ²⁺	0.7-1.1	[35]	0.5-0.9	[35]	0.6	[36]	Acidosis
Cl-	95-125	[35]	118-135	[35]	59.4 ± 30.4	[36]	Hyper/hypo Chloremia

4.6 参考文献

- [1] James P Chambers, Bernard P Arulanandam, Leann L Matta, Alex Weis, James J Valdes, "Biosensor recognition elements", *Curr Issues Mol Biol*, 10, 2008.
- [2] Young-Geun Park, Sangil Lee, Jang-Ung Park, "Recent Progress in Wireless Sensors for Wearable Electronics", *Sensors*, Vol. 19, Issue 20, 2019.
- [3] Amay J. Bandodkar, Philipp Gutruf, Jungil Choi, KunHyuck Lee, Yurina Sekine, Jonathan T. Reeder, William J. Jeang, Alexander J. Aranyosi, Stephen P. Lee, Jeffrey B. Model, Roozbeh Ghaffari, Chun-Ju Su, John P. Leshock, Tyler Ray, Anthony Verrillo, Kyle Thomas, Vaishnavi Krishnamurthi, Seungyong Han, Jeonghyun Kim, Siddharth Krishnan, Tao Hang, John A. Roger, "Battery-free, skin-interfaced microfluidic/electronic systems for simultaneous electrochemical, colorimetric, and volumetric analysis of sweat", *Science Advances*, Vol.5, Issue 1, 2019.
- [4] Ha Uk Chung, Bong Hoon Kim, Jong Yoon Lee, Jungyup Lee, Zhaoqian Xie, Erin M. Ibler, KunHyuck Lee, Anthony Banks, Ji Yoon Jeong, Jongwon Kim, Christopher Ogle, Dominic Grande, Yongjoon Yu, Hokyung Jang, Pourya Assem, Dennis Ryu, Jean Won Kwak, Myeong Namkoong, Jun Bin Park, Yechan Lee, Do Hoon Kim, Arin Ryu, Jaeseok Jeong, Kevin You, Bowen Ji, Zhuangjian Liu, Qingze Huo, Xue Feng, Yujun Deng, Yeshou Xu, Kyung-In Jang, Jeonghyun Kim, Yihui Zhang, Roozbeh Ghaffari, Casey M. Rand, Molly Schau, Aaron Hamvas, Debra E. Weese-Mayer, Yonggang Huang, Seung Min Lee, Chi Hwan Lee, Naresh R. Shanbhag, Amy S. Paller, Shuai Xu, John A. Rogers, "Binodal, wireless epidermal electronic systems with in-sensor analytics for neonatal intensive care", *Science*, Vol. 363, Issue 6430, 2019.
- [5] Do Hee Keum, Su-Kyoung Kim, Jahyun Koo, Geon-Hui Lee, Cheonhoo Jeon, Jee Won Mok, Beom Ho Mun, Keon Jae Lee, Ehsan Kamrani, Choun-Ki Joo, Sangbaie Shin, Jae-Yoon Sim, David Myung, Seok Hyun Yun, Zhenan Bao, Sei Kwang Hahn, "Wireless smart contact lens for diabetic diagnosis and therapy", *Science Advances*, Vol. 6, Issue 17, 2020.
- [6] Minjae Ku, Joohee Kim, Jong-Eun Won, Wonkyu Kang, Young-Geun Park, Jihun Park, Jae-Hyun Lee, Jinwoo Cheon, Hyun Ho Lee, Jang-Ung Park, "Smart, soft contact lens for wireless immunosensing of cortisol", *Science Advances*, Vol. 6, Issue 28, 2020.
- [7] Joohee Kim, Minji Kim, Mi-Sun Lee, Kukjoo Kim, Sangyoon Ji, Yun-Tae Kim, Jihun Park, Kyungmin Na, Kwi-Hyun Bae, Hong Kyun Kim, Franklin Bien, Chang Young Lee, Jang-Ung Park. "Wearable smart sensor systems integrated on soft contact lenses for wireless ocular diagnostics". *Nat. Commun.* Vol. 8, 14997, 2017.

- [8] Shiyi Liu, Carolina Moncion, Jianwei Zhang, Lakshmini Balachandar, Dzifa Kwaku, Jorge J. Riera, John L. Volakis, and Junseok Chae, "Fully Passive Flexible Wireless Neural Recorder for the Acquisition of Neuropotentials from a Rat Model", ACS Sens., Vol. 4, Issue 12, 2019.
- [9] Sadaf Charkhabi, Kyle J. Jackson, Andee M. Beierle, Adam R. Carr, Eric M. Zellner, Nigel F. Reuel, "Monitoring Wound Health through Bandages with Passive LC Resonant Sensors", ACS Sens. Vol. 6, Issue 1, 2021.
- [10] Manu S. Mannoor, Hu Tao, Jefferson D. Clayton, Amartya Sengupta, David L. Kaplan, Rajesh R. Naik, Naveen Verma, Fiorenzo G. Omenetto, Michael C. McAlpine, "Graphene-based wireless bacteria detection on tooth enamel", *Nature Commun*, Vol. 3, 763, 2012.
- [11] Clementine M Boutry, Levent Beker, Yukitoshi Kaizawa, Christopher Vassos, Helen Tran, Allison C Hinckley, Raphael Pfattner, Simiao Niu, Junheng Li, Jean Claverie, Zhen Wang, James Chang, Paige M Fox, Zhenan Bao, "Biodegradable and flexible arterial-pulse sensor for the wireless monitoring of blood flow", *Nat Biomed Eng*, 3, 1, 2019.
- [12] Di Lu, Ying Yan, Raudel Avila, Irawati Kandela, Iwona Stepien, Min-Ho Seo, Wubin Bai, Quansan Yang, Chenhang Li, Chad R. Haney, Emily A. Waters, Matthew R. MacEwan, Yonggang Huang, Wilson Z. Ray, John A. Rogers, "Bioresorbable, Wireless, Passive Sensors as Temporary Implants for Monitoring Regional Body Temperature", Advanced Healthcare Materials, Vol. 9, Issue 16, 2020.
- [13] Xian Huang, Yuhao Liu, Kaile Chen, Woo-Jung Shin, Ching-Jui Lu, Gil-Woo Kong, Dwipayan Patnaik, Sang-Heon Lee, Jonathan Fajardo Cortes, John A. Rogers, "Stretchable, Wireless Sensors and Functional Substrates for Epidermal Characterization of Sweat", Small, Vol. 10, Issue 15, 2014.
- [14] Hairong Kou, Lei Zhang, Qiulin Tan, Guanyu Liu, Helei Dong, Wendong Zhang, Jijun Xiong, "Wireless wide-range pressure sensor based on graphene/PDMS sponge for tactile monitoring", *Scientific Reports*, Vol. 9, 3916, 2019.
- [15] Flurin Stauffer, Qiang Zhang, Klas Tybrandt, Byron Llerena Zambrano, Julian Hengsteler, André Stoll, Camill Trüeb, Michael Hagander, Jean-Marc Sujata, Felix Hoffmann, Joy Schuurmans Stekhoven, Josefine Quack, Hannes Zilly, Johannes Goedejohann, Marc P. Schneider, Thomas M. Kessler, William R. Taylor, Roland Küng, János Vörös, "Soft Electronic Strain Sensor with Chipless Wireless Readout: Toward Real-Time Monitoring of Bladder", *Adv. Mater. Technol.*, Vol. 3, Issue 6, 2018.
- [16] 辻村清也, 加納健司, "酵素バイオ電池の最近の展開 Recent Development of Enzyme-based Biofuel Cells", *GS Yuasa technical Report*, Vol. 5, 2008.

- [17] Sijie Yin, Xiaohan Liu, Yuka Kobayashi, Yuta Nishina, Ryo Nakagawa, Ryoji Yanai, Kazuhiro Kimura, Takeo Miyake, "A needle-type biofuel cell using enzyme/mediator/carbon nanotube composite fibers for wearable electronics", *Biosensors and Bioelectronics*, Vol. 165, 2020.
- [18] Ben Feldman, Ronald Brazg, Sherwyn Schwartz, Richard Weinstein, "A Continuous Glucose Sensor Based on Wired Enzyme Technology Results from a 3 Day Trial in Patients with Type 1 Diabetes", *Diabetes Technology & Therapeutics*, Vol. 5, No. 5, 2004.
- [19] N. Thomas, I. Lähdesmäki, B. A. Parviz, "A contact lens with an integrated lactate sensor", *Sensors and Actuators B: Chemical*, Vol. 162, Issue 1, 2012.
- [20] Melanie Senior, "Novartis signs up for Google smart lens", *Nat Biotechnol.*, Vol. 32, 9, 2014.
- [21] Ming Xing Chu, Kumiko Miyajima, Daishi Takahashi, Takahiro Arakawa, Kenji Sano, Shin-ichi Sawada, Hiroyuki Kudo, Yasuhiko Iwasaki, Kazunari Akiyoshi, Manabu Mochizuki, Kohji Mitsubayashi, "Soft contact lens biosensor for in situ monitoring of tear glucose as non-invasive blood sugar assessment", *Talanta*, Vol. 83, Issue 3, 2011.
- [22] Jennifer D. Lane, David M. Krumholz, Robert A. Sack, Carol Morris, "Tear Glucose Dynamics in Diabetes Mellitus", *Current Eye Research*, Vol. 31, Issue 11, 2006.
- [23] Seung Ho Lee, Yong Chan Cho, Young Bin Choy, "Noninvasive self-diagnostic Device for tear Collection and Glucose Measurement", *Scientific Reports*, 9, 4747, 2019.
- [24] Young-Geun Park, Sangil Lee, Jang-Ung Park, "Recent Progress in Wireless Sensors for Wearable Electronics", *Sensors*, Vol. 19, Issue 20, 2019.
- [25] Daniel A. del Portal, MD, Frances Shofer, PhD, Mark E. Mikkelsen, MD, MSCE, Philip J. Dorsey, Jr., MD, MPH, David F. Gaieski, MD, Munish Goyal, MD, Marie Synnestvedt, PhD, Mark G. Weiner MD, Jesse M. Pines, MD, MBA, MSCE, "Emergency Department Lactate Is Associated with Mortality in Older Adults Admitted With and Without Infections", Academic Emergency Medicine, Vol. 17, Issue 3, 2010.
- [26] Carlos Eduardo Ferrante do Amaral, Benhard Wolf, "Current development in non-invasive glucose monitoring", *Med Eng Phys.*, Vol. 30, Issue 5, 2008.
- [27] Jennifer D Lane, David M Krumholz, Robert A Sack, Carol Morris, "Tear glucose dynamics in diabetes mellitus", *Curr Eye Res.*, Vol. 31, Issue 11, 2006.
- [28] James Moyer, Donald Wilson, Irina Finkelshtein, Bruce Wong, Russell Potts, "Correlation Between Sweat Glucose and Blood Glucose in Subjects with Diabetes", Diabetes Technology & Therapeutics, Vol. 14, Issue 5, 2012.
- [29] Marcelo Ricardo Romero, Facundo Ahumada, Fernando Garay, Ana M Baruzzi, "Amperometric biosensor for direct blood lactate detection", *Anal Chem.*, Vol. 82, Issue 13, 2010.

- [30] N. J. Van Haeringen, "Clinical biochemistry of tears", Surv Ophthalmol., Vol. 26, Issue 2, 1981.
- [31] S. R. Corrie, J. W. Coffey, J. Islam, K. A. Markeyde, M. A. F. Kendall, "Blood, sweat, and tears: developing clinically relevant protein biosensors for integrated body fluid analysis", *Analyst.*, Issue 13, 2015.
- [32] Antonio Tricoli, Giovanni Neri, "Miniaturized Bio-and Chemical-Sensors for Point-of-Care Monitoring of Chronic Kidney Diseases", *Sensors*, Vol. 18, Issue 4, 2018.
- [33] Huanfen Yao, Angela J Shum, Melissa Cowan, Ilkka Lähdesmäki, Babak A Parviz, "A contact lens with embedded sensor for monitoring tear glucose level", *Biosens Bioelectron.*, Vol. 26, Issue 7, 2010.
- [34] Yan-Ling Liu, Rong Liu, Yu Qin, Quan-Fa Qiu, Zhen Chen, Shi-Bo Cheng, and Wei-Hua Huang, "Flexible Electrochemical Urea Sensor Based on Surface Molecularly Imprinted Nanotubes for Detection of Human Sweat", *Anal. Chem.*, Vol. 90, Issue 21, 2018.
- [35] Sajina Tinku, Cristian Collini, Leandro Lorenzelli, Ravinder S. Dahiya, "Smart contact lens using passive structures", SENSORS, 2014 IEEE, 2014.
- [36] Wenting Dang, Libu Manjakkal, William Taube Navaraj, Leandro Lorenzelli, Vincenzo Vinciguerra, Ravinder Dahiya, "Stretchable wireless system for sweat pH monitoring", *Biosensors and Bioelectronics*, Vol. 107, 2018.

第5章 パリティ-時間対称性を用いた高感度なワイヤレス・

バイオセンシング

5.1 はじめに

前章では、酵素の基質特異性と共振器型アンテナの負荷変調を利用することで、特定の検 出対象(生化学物質)を選択的に、かつワイヤレスに計測可能な磁界共鳴結合系を構築した. 一方で、 リーダーを導入した際の無線計測実験では、 基質の濃度変化に伴うセンサ感度が、 パッシブ型バイオセンサ単体の場合と比べて低下してしまった:1.6 Ω/0.1 mM(パッシブ 型バイオセンサ)、 $1.0 \Omega/0.1 \,\mathrm{mM}$ (無線計測)、このセンサ感度低下を引き起こす最大の原 因は,磁界共鳴結合系における損失(エネルギー散逸)とその〇値にある[1-2].つまり, LCR 共振器を用いた磁界共鳴結合系において、高感度な無線計測を達成するためには結合 系全体のエネルギー効率を改善する必要があり,如何にして 〇 値を高めるかが本章の核心 をなす問いと言える. 本研究では、この課題に対して量子力学的知見であるパリティ-時間 対称性というアイデアを導入することで,磁界共鳴結合系の Q 値改善を試みた.また,高 Q 値が維持された磁界共鳴結合系において、パッシブ型バイオセンサ(詳細は第 4 章を参 照)を駆動した場合、センサ感度が大幅に向上することを明らかにした。本章では、これら の研究内容について, 数値解析や実験結果を用いた詳細な解説を行う. 一方で, これまでに 報告されているパッシブ型バイオセンサの無線計測については, 既存のシングル (またはマ ルチ) ターン・コイルの使用が一般的であり、前章での実験結果と同様、センサ感度に関わ る課題が残されていた[3-22].従って、本章で提案するパリティ-時間対称性によるセンサ 感度向上手法は,第4章で作製したパッシブ型バイオセンサのみならず,LCR 共振器を基 盤とする全てのパッシブ型バイオセンサにとって有効な技術になりえると考える.

本節では、まずパリティ-時間対称性について量子力学的視点から説明し、その本質的理解を深める。その後、本研究で取り扱う磁界共鳴結合系にパリティ-時間対称性を適応した場合の効果について Q 値の観点から解説する。

5.1.1 パリティ-時間対称性

量子力学において、観測可能な物理量(オブザーバル)に対応する演算子はすべて実数であるため、そのエネルギー演算子(ハミルトニアン演算子)はエルミートであるという原理がある($H=H^{\dagger}$). ここで、Hは系のエネルギーを表す物理量であり、その固有値を解くことで系がとりえる固有エネルギーを特定することができる。一方、近年になり、エルミート演算子でなくてもその固有値が実数になりえることが分かってきた。これを実現する原理が、1998年に Bender と Boettcher によって提案されたパリティ-時間(PT)対称性である[23]. ここで、P は空間反転($x \to -x$)、T は時間反転($t \to -t$)を意味する。もし、対象

となる系がこの 2 つの PT 変換によって変わらないものであるならば、そのハミルトニアン演算子は非エルミートであるにも関わらず、実数の固有値を持つとされている.即ち、非エルミートなハミルトニアンが有する複素数の固有値が、PT 対称性が満たされる条件下においては、実固有値(虚部成分が 0)となりえるのである.このように複素固有値が実固有値に変わるポイントを EP (特異点)と呼び、ここでは、複数固有状態の融合と非エルミート縮退が観測可能である(1 つの系において、2 つ以上の異なった固有値が同じエネルギー準位を持つこと).以上が PT 対称性の専門的説明である. Figure 5.1 は上述した内容をまとめたものである. 一般的に、量子系は閉じた系(エルミートなハミルトニアン)と開いた系(非エルミートなハミルトニアン)に分類可能であり、閉じた系とは外界からエネルギーまたは確率が流出入しないと仮定したシステムを指す.しかしながら、実環境下においては、計測に際して外界との接触を余儀なくされるため、閉じた系の構築は不可能である.従って、実験的に検証可能なシステムは全て開いた系として扱う[24].ここで、閉じた系におけるエネルギーの総量は保存されるため、観測量である固有値は全て実数となる.一方、開いた系においてはエネルギーの散逸が発生するため、固有値が複素数となる.しかしながら、もし非エルミート演算子が PT 対称性を満たす場合、その固有値は実数となりえるのである.

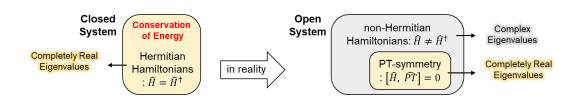


Figure 5.1 The concept figure of PT-symmetric system.

このような非エルミート系における PT 対称性は、当初、量子力学分野で発展した概念であったが、シュレーディンガー方程式とヘルムホルツ方程式の相関性から、その後、様々な物理系で概念実証が行われた(光学・フォトニクス[25-26]、音響学[27]、力学[28]). 特に、光学・フォトニクス分野での応用研究は目覚ましく、EP (特異点)を利用した新奇な機能が多数報告されている:Loss-induced transparency[29]、Loss-induced revival of lasing[30]、Unidirectional invisibility[31-34]、Non-reciprocal light propagation[35-37]、Coherent perfect absorption[38-39]、On-demand directional emission[40]、Enhanced sensitivity[41-45]。こうした背景の中、2011 年、Schindler らによってはじめて PT 対称性の電子工学応用が実証されると[46]、その後、多くの研究者が PT 対称性を高周波回路(LCR 共振結合系)に導入し、革新的機能性を実現することになった:ワイヤレス給電システム(ロバスト性、伝送距離の伸長、高効率な電力伝送)[47-49]、ワイヤレス計測システム(センサ感度の向上)[50-53]。このように、PT 対称性は既に理論的概念の枠を越え、多くの物理系でその存在が証明されており、結合系における基礎的知見となりつつある。

5.1.2 並列型 LCR 共振回路における Q 値

本項では、並列型 LCR 共振回路における Q 値について解説し、PT 対称性を導入した場 合の回路的特徴を考察する. 本研究で主体的に利用した並列型 LCR 共振器は, 各電子素子: インダクタンス (L)、キャパシタンス (C)、レジスタンス (R) によって構成された高周波 回路である (Figure 5.2). ここで, 理想的に無損失な回路 (保存系) は, レジスタンス (R) を含まない LC 回路にて表現される (図中左). しかしながら, 実際の LC 回路は各素子に 寄生抵抗(r)を含んでおり,それらは並列に接続された LCR 共振器(散逸系)として表現 可能である(図中右)、よって、これら寄生抵抗を完全に排除することは出来ず、理想的に 無損失な LC 回路の構成は極めて難しいと言える. 加えて, 第4章で作製したパッシブ型バ イオセンサは、電気化学測定部分を化学抵抗器として見立てており、故に作製したデバイス は必ず損失を含んだ LCR 共振器となる. ここで、LCR 共振器の Q 値改善について考える. Q 値とは LC 回路に蓄積されるエネルギーと散逸されるエネルギーの比で表現可能である $(Q = R\sqrt{C/L})$. ここで、レジスタンス (R) を極限まで大きくした場合を考えると、R に流 れる電流は大幅に減少し、結果としてエネルギーのほとんどが LC 回路内でやり取りされる こととなる. これは, LC 回路にレジスタンス素子が何も接続されていない, 開放状態(OPEN) と捉えることができ、LCR 共振器は共振周波数において理想的な LC 回路として振舞う. このように、LCR 共振器のレジスタンス成分を増大させれば、無損失な高周波回路を生み 出すことができる. これを実現するための手法が PT 対称性の適応であり, 実装においては ゲイン共振器の導入が必要となる. ここで, ゲイン共振器は「利得」, ロス共振器は「損失」 を意味し、両者を結合させることで既存の散逸系が有する損失の補完が可能となる.即ち、 ゲイン共振器とロス共振器により構成される磁界共鳴結合系では,エネルギー的な釣り合 いが保たれており、限りなく無損失に近い保存系を実現することが出来る.以上、本項では 並列型 LCR 共振器による Q 値の意味合いと,PT 対称性の導入による無損失な磁界共鳴結 合系について解説した. 次節からは, 本コンセプトを実現するためのシステム開発を行う.

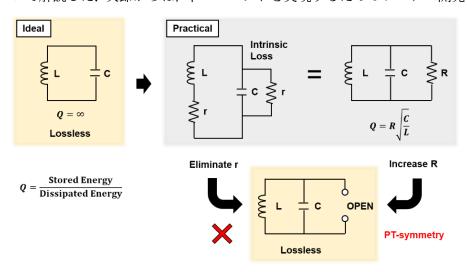


Figure 5.2 Q factor in parallel LCR circuits.

5.2 数値モデリング

本節では、等価回路を用いた数値解析を実施する.数値解析の対象となるモデルは、磁界 共鳴結合系の固有値と、リーダー側から見た場合の入力インピーダンスとする.また、それ ぞれのモデルにおいて、各電子素子パラメータを変化させたときのシミュレーション結果 を示すことで、PT 対称性の理解が深まる.

5.2.1 固有値の解析

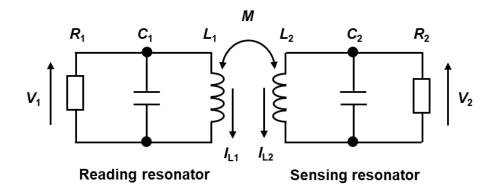


Figure 5.3 The circuit diagram of the LCR parallel resonant coupling system.

Figure 5.3 は本研究で用いる磁界共鳴結合系の回路図を示しており、2 つの並列型 LCR 共振器 (リーダー/センサ) は相互インダクタンスにより結合している。ここで、電圧に関するバランス方程式を導出し、そのアドミタンス行列式を解くことで結合系の固有値が算出可能となる[52]。このとき、上記の回路図から導出したバランス方程式を以下に示す(詳細な導出過程は付録 B に記載する)。

$$\begin{pmatrix} \frac{j\omega}{2} \left[\frac{{\omega_1}^2}{\omega^2 (1 - k^2)} - 1 \right] - \gamma_1 & -\frac{jk\omega_1\omega_2}{2\omega (1 - k^2)} \\ -\frac{jk\omega_1\omega_2}{2\omega (1 - k^2)} & \frac{j\omega}{2} \left[\frac{{\omega_2}^2}{\omega^2 (1 - k^2)} - 1 \right] - \gamma_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \end{pmatrix} = 0$$
 (5.1)

ここで、 ω_n は各共振器の角周波数、 $a_n \left(= \sqrt{\frac{c_n}{2}} \cdot V_n \right)$ は各キャパシタに蓄えられたエネルギーの平方根、 $\gamma_n \left(= \frac{1}{2R_n C_n} \right)$ はゲイン/ロスの割合を表す。このアドミタンス行列を角周波数(ω)について解くことで、以下のシステム固有値が得られる(詳細な導出過程は付録 B に記載する).

$$\begin{cases} \omega_{1,2} = \frac{-m \pm \sqrt{m^2 - 4\left(\frac{t}{2} + n\right)}}{2} - \frac{A}{4} \\ \omega_{3,4} = \frac{m \pm \sqrt{m^2 - 4\left(\frac{t}{2} - n\right)}}{2} - \frac{A}{4} \end{cases}$$

$$\begin{cases} m = \sqrt{t - p} \\ n = -\frac{q}{2\sqrt{t - p}} \\ t = \sqrt[3]{-\frac{Q}{2} + \sqrt{\frac{Q}{2}}^2 + \frac{P}{3}} + \sqrt[3]{-\frac{Q}{2} - \sqrt{\frac{Q}{2}}^2 + \frac{P}{3}} - \frac{1}{3}\alpha \end{cases}$$

$$P = \beta - \frac{\alpha^2}{3}$$

$$Q = \frac{2\alpha^3}{37} - \frac{\alpha\beta}{3} + \gamma$$

$$\alpha = -p$$

$$\beta = -4r$$

$$\gamma = 4pr - q^2$$

$$p = -\frac{3}{8}A^2 + B$$

$$q = \frac{1}{8}A^3 - \frac{1}{2}AB + C$$

$$r = -\frac{3}{256}A^4 + \frac{1}{16}A^2B - \frac{1}{4}AC + D$$

$$A = \frac{b}{a}$$

$$B = \frac{c}{a}$$

$$C = \frac{d}{a}$$

$$D = \frac{e}{a}$$

$$a = -(1 - k^2)^2$$

$$b = j2(1 - k^2)^2(\gamma_1 + \gamma_2)$$

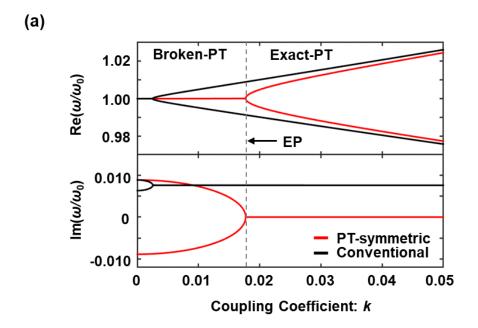
$$c = (\omega_1^2 + \omega_2^2)(1 - k^2) + 4(1 - k^2)^2\gamma_1\gamma_2$$

$$d = -j2(\omega_2^2\gamma_1 + \omega_1^2\gamma_2)(1 - k^2)$$

$$e = \omega_1^2\omega_2^2(k^2 - 1)$$

式(5.2)より4つのシステム固有値が得られる.しかしながら一般的に、符号の異なる同 じ大きさの固有値は同質であることから[50]、シミュレーションに利用する固有値は $\omega_{3,4}$ の 2 つと定めた. ここで, シミュレーションに使用した各電子素子のパラメータは以下の通り である. 各インダクタンス $(L_1, L_2 = 32 \text{ nH})$, 各キャパシタンス $(C_1, C_2 = 102 \text{ pF})$, 各共振 周波数 $(f_n = 1/(2\pi\sqrt{L_n \cdot C_n}) = 88.15 \text{ MHz})$, センサ側レジスタンス $(R_2 = 1 \text{ k}\Omega)$. また, 既 存の共振結合系(ロス-ロス)においては,リーダー側レジスタンス($R_1=1.4~{
m k}\Omega$)を, ${
m PT}$ 対称性を有する共振結合系(ゲイン-ロス)においては, リーダー側レジスタンス $(R_2 = -1 \, \mathrm{k}\Omega)$ を用いた. Figure 5.4 に結合係数 (k) を変化させたときの固有値 (実部/虚部) 変化とナイ キストプロット示す. 黒線は既存、赤線は PT 対称性を有する磁界共鳴結合系を意味する. Figure 5.1a より,PT 対称性を有する LCR 並列型結合系は,特異点(EP)において急峻な 相転移が見られる(本シミュレーションにおける EP は $k_{ ext{EP}}$ = 0.017709にて観測される). ここで、PT 対称性は EP を境とした 2 つの領域(Broken-PT、Exact-PT)に分けることが できる.Broken-PT 領域($k < k_{\rm EP}$)では,システムの固有値実部(${
m Re}(\omega/\omega_0)$)は一定の値 を示し、固有値虚部($\operatorname{Im}(\omega/\omega_0)$)は符号対称な値を示すことから、固有値は複素数を示す ことが分かる.これは、結合系が完全に釣り合っていないことを表している(1つの固有モ ードが時間ごとに生長する傍ら,もう1つの固有モードは時間ごとに減衰する状態).一方, $ext{Exact-PT}$ 領域($k>k_{ ext{EP}}$)では, $ext{Re}(\omega/\omega_0)$ は符号対称な値を示し, $ext{Im}(\omega/\omega_0)$ は必ず 0 にな ることから,固有値は実数を示すことが分かる.これは,結合系が完全に釣り合っているこ とを表している(2つの固有モードが互いに振動することで、各固有モードにおいて生長も 減衰も観測されない状態).以上が,PT 対称性に関する固有値の振る舞いである.他方,既 存の散逸系では,結合係数が増加してもIm(ω/ω₀)が 0 になることは決してないため,シス テムの固有値は常に複素数を示すと言える.ここで,既存システムにおける $\mathrm{Re}(\omega/\omega_0)$ は, k≈0の地点から分離を始めている.この固有値実部の分離は,前章でも取り上げた共振器 同士の強い結合を意味しており、共振周波数を軸とした周波数分離として観測される. 他方、 PT 対称性を有するシステムに着目した場合、結合係数の増加による $Re(\omega/\omega_0)$ の分離は、 k=0.017709の地点から始まっている. ここで, 結合係数は共振器間の伝送距離と相関性を 持つことを鑑みれば、PT 対称性では比較的短い伝送距離にて、共振周波数の分離が始まる と言える.次に,Figure 5.1b に結合係数(k)の変化に伴う結合系のナイキストプロットを 示す.この図より、kが十分低い場合、それぞれの結合系は単一の $\mathrm{Re}(\omega/\omega_0)$ を共有している ことが分かる. その後, kが十分大きくなると $\operatorname{Re}(\omega/\omega_0)$ が分離する様子が窺える. このとき, PT 対称性を満たす系では $\text{Im}(\omega/\omega_0)=0$ となり、既存系では $\text{Im}(\omega/\omega_0)\neq 0$ となる.

以上,本項では磁界共鳴結合系における固有値のシミュレーションを実施し,各結合系 (PT 対称性/既存)における軌跡の違いを明らかにした.



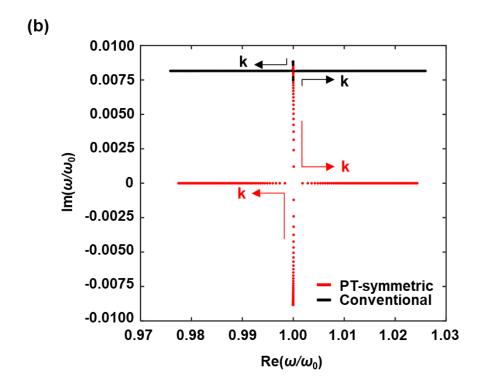


Figure 5.4 Evolutions of eigenvalues on LCR parallel resonant coupling system.

(a) eigenvalues vs. coupling coefficient, (b) Nyquist plots.

5.2.2 結合係数の解析

次に、結合係数と伝送距離の関係を明らかにするため、共振器同士の位置変化モデルを利用した数値解析を行う。現状、結合係数を直接計測する装置は存在しないため、理論モデルを用いた結合係数の推定は重要である。一般的に、磁界共鳴方式は近傍界における磁界結合を主体としており、結合係数は 1 次コイル(リーダー側)から発生した磁界が、どの程度 2 次コイル(センサ側)に鎖交するかを表した無次元数である。従って、結合係数 (k) は、コイル間の垂直方向距離 (d)、水平方向の位置ずれ (l)、系射角 (θ) 、透磁率 (μ_0) 、各共振器のコイル半径 (r_n) に大きく影響を受ける(Figure 2.25 参照)。本項では、この結合係数 (k) と伝送距離 (d) の関係について、第 2 章の項(2.3.1)で導出した式(2.19)を流用することで、シミュレーションによる数値解析を行った(Figure 5.5)。この図より、伝送距離が長くなるにつれ、共振器間の結合係数が低下していく様子が確認できる。また、前項で示した EP $(k_{EP}=0.017709)$ に到達するための共振器間距離 (d_{EP}) を得ることができる($d_{EP}=14.5$)。以上、本モデルを使用することで、目的とする結合係数を実現するための共振器間距離を見積もることができた。以降に示す実験でも、このモデルを用いた距離の設定を行う。

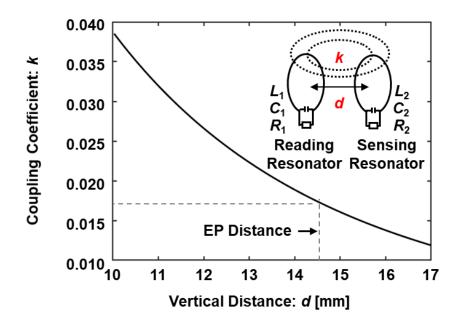


Figure 5.5 Coupling coefficient as a function of the vertical distance between reading and sensing resonators.

5.2.3 入力インピーダンスの解析

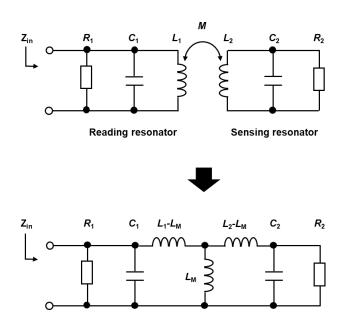


Figure 5.6 The equivalent circuit transformation of a LCR parallel resonant coupling system.

最後に、本章で作製する磁界共鳴結合系において、センサ側で発生する微弱な化学抵抗変化(Δr)が、リーダー側で読み取られる入力インピーダンス($Z_{\rm in}$)にどのような変化を及ぼすかをシミュレーションにより解析する。また、既存のロス-ロス結合と比較して PT 対称性のインピーダンスはどのような振る舞いを示すかについても確認する。まず、リーダーから見た $Z_{\rm in}$ は、Figure 5.6 に示す回路変形により以下のように表現可能である。

$$Z_{\text{in}} = \frac{\frac{1}{\frac{1}{\frac{1}{R_2} + j\omega C_2}} + \frac{1}{j\omega L_M} + \frac{1}{j\omega L_M} + \frac{1}{j\omega L_M} + \frac{1}{R_1} + j\omega C_1}$$

$$(5.3)$$

ここで、 $L_{\rm n}$ 、 $C_{\rm n}$ 、 $R_{\rm n}$ は各共振器のインダクタンス、キャパシタンス、レジスタンスを表している。また、 $L_{\rm M}$ (= $k\sqrt{L_1\cdot L_2}$) は相互インダクタンスを意味しており、kは結合係数である。このとき、各共振器のレジスタンス成分を変化させたときの入力インピーダンス変化についてシミュレーションを行う。リーダー側抵抗 (R_1)を-2 k Ω から2 k Ω の範囲で変化させた。これは、リーダー側共振器の特性をゲインからロスの範囲で変化させるためである(R_1 = -2k \sim 0 Ω : ゲイン、 R_1 = 0~2k Ω : ロス)。次に、センサ側抵抗(R_2)を1k Ω から990 Ω の範囲で変化させた。これは、第 4 章で作製したパッシブ型グルコースセンサを再現したパラメータである。また結合係数に関しては、前述の固有値シミュレーション結果から導かれた

値 (k_{EP} = 0.017709) を利用することで、PT 対称性において最も特異的な EP を再現する. このとき、上記パラメータを使用し、入力インピーダンス実部の絶対値($|Re(Z_{in})|$)を計算 した結果が Figure 5.7 である. この図は、赤/青に色分けされており、それぞれゲイン-ロス 結合/ロス-ロス結合を意味する.ここで $|Re(Z_{in})|$ について,リーダー側抵抗が $R_1 = -1 \, \mathrm{k}\Omega$, およびセンサ側抵抗が $R_2 = 1$ k Ω のとき、急峻なピークを迎えていることが分かる。これは リーダー側とセンサ側でゲインとロスの釣り合いが保たれており、結果として k_{EP} = 0.017709の条件においてシステムが EP に到達することを意味している. 次に, センサ側で 発生する化学抵抗変化(Δr)に対して,入力インピーダンス(Z_{in})がどのように変化する か確認する.まず、 Δr に対する $|\text{Re}(Z_{\text{in}})|$ の変化を以下のように定義する: $\Delta \text{Re}(Z_{\text{in}})=$ $|\text{Re}(Z_{\text{in}(i)}) - \text{Re}(Z_{\text{in}(0)})|$. ここで,図中の EP から Δr だけ変化したときの $\Delta \text{Re}(Z_{\text{in}})$ は,非常に 大きな値を示すことが分かる.これは,ゲインとロスの均衡が保たれている状態(EP)か ら、ゲインとロスの均衡が崩壊した様子を表しており、 $\Delta \text{Re}(Z_{\text{in}})$ の変化率は均衡崩壊に伴っ て指数関数的に減衰していく様子が見て取れる.以上より, EP 付近でセンサ側の抵抗値 (R_2) が微弱に変化すると、入力インピーダンス実部(Re(Zin))が急激に変化することが分かっ た、この特性を利用することで、微弱なパッシブ型バイオセンサの抵抗変化を高感度に無線 計測可能であると言える.

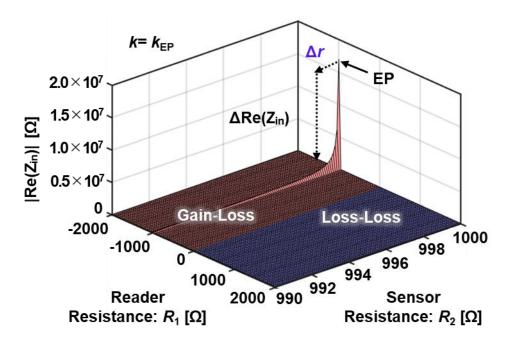


Figure 5.7 Characteristics of the reading resonator coupled with the passive glucose sensor. The figure shows absolute value of real part of the input impedance $|Re(Z_{in})|$ as a function of the reader resistance R_1 and the sensor resistance R_2 .

5.3 磁界共鳴結合系におけるパリティ-時間対称性の実装

ここでは、前節で計算したパラメータを用いて、PT 対称性を満たす共振結合系を実験的に構成する. 実装するシステムの概要は、第4章で構築した磁界共鳴結合系と同様であり、リーダー側共振器のみをロスからゲインに変更する. よって、本節では具体的なゲイン共振器の作製方法と、ゲイン-ロス結合により実現した PT 対称性について評価を行う.

5.3.1 ゲイン共振器の設計と作製

従来の並列型 LCR 共振器において,抵抗(R)はエネルギーを消費する役割を担ってお り、共振周波数で特定のロス(損失)を示すことが分かっている。一方、本項で作製するゲ イン共振器はロス共振器と対比させると、共振周波数で特定のゲイン(利得)を示す。これ は負性抵抗(-R)として表現可能であり、その役割はエネルギーの供給であると言える. ゲイン共振器の実装に至っては,負性抵抗の開発が必須であり,これまでに OP アンプ (Operational Amplifier) や FET (Field Effect Transistor) を利用した開発例が報告されて いる[46-53]. 本研究ではゲート-ドレイン間容量の小さいデュアルゲート MOSFET を用い たクラップ発振回路を作製することで、周波数安定性の高い負性抵抗を実現した、特に、こ れまで報告されているゲイン共振器との大きな違いは負性抵抗の値にあり、パッシブ型バ イオセンサの損失成分(約1 k Ω)を補完するだけの比較的大きな値を得ることに成功した. Figure 5.8 に本研究で作製したゲイン共振器 (クラップ発振回路) の回路図を示す. 使用し た各電子素子のパラメータは以下の通りである:インダクタンス $(L_1 = 32 \text{ nH})$, MOSFET (BF992, NXP Semiconductors), バイアス抵抗 $(R_{1,1} = 4.7 \text{ k}\Omega, R_{1,2} = 2.2 \text{ k}\Omega)$, ソース抵 抗 $(R_S=120\,\Omega)$, ソースキャパシタ $(C_S=180\,\mathrm{pF})$, バイパスキャパシタ $(C_i,C_o=100\,\mathrm{pF})$, 発振用キャパシタ($C_{1.1}$, $C_{1.2} = 300$ pF, $C_{1.3} = 270 + 10 \sim 50$ pF). ただし, $C_{1.3}$ はチューニン グキャパシタ(CVN6500)により調整可能である。また、 L_1 の両端にはネットワークアナ ライザ計測用の SMA コネクタが接続される.

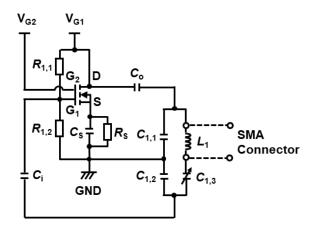


Figure 5.8 The circuit diagram of our Clapp oscillator.

ここで、クラップ発振回路の動作原理とインピーダンス特性を理解するため、等価回路変換により入力インピーダンスの導出を行う。まず、簡単化したクラップオシレータの回路図を Figure 5.9a に示す。

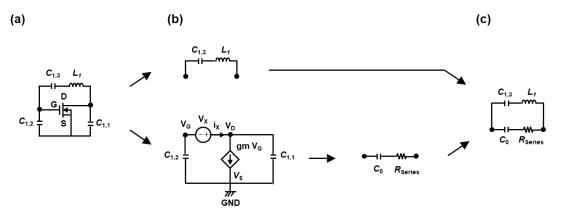


Figure 5.9 Equivalent circuit transformation of the Clapp oscillator.

この図よりクラップ発振回路は、リアクタンス素子($C_{1,3}$, L_1)とピアース発振回路に分解することができ(Figure 5.9b)、ピアース発振回路については、電源(V_X)を接続するものとする、このとき、オームの法則より以下の関係式が得られる。

$$\begin{cases} i_{X} = g_{m} \cdot V_{G} + \frac{V_{D}}{\left(\frac{1}{j\omega C_{1,1}}\right)} \\ V_{G} = -i_{X} \cdot \frac{1}{j\omega C_{1,2}} \\ V_{D} = V_{G} + V_{X} \end{cases}$$

$$(5.4)$$

ここで、 i_X は電源(V_X)から流れる電流、 g_m は MOSFET の相互コンダクタンス、 $V_G/V_D/V_S$ はそれぞれゲート/ドレイン/ソース電圧を表す。また、 $C_{1,1}/C_{1,2}$ はキャパシタを意味する。これらの関係式を利用することで、ピアース発振回路における等価インピーダンス(Z)が算出可能となる。

$$i_{X} = -g_{m} \cdot i_{X} \cdot \frac{1}{j\omega C_{1,2}} + \frac{-i_{X} \cdot \frac{1}{j\omega C_{1,2}} + V_{X}}{\left(\frac{1}{j\omega C_{1,1}}\right)}$$

$$i_{X} \left\{ 1 + g_{m} \cdot \frac{1}{j\omega C_{1,2}} + \frac{\frac{1}{j\omega C_{1,2}}}{\left(\frac{1}{j\omega C_{1,1}}\right)} \right\} = \frac{V_{X}}{\left(\frac{1}{j\omega C_{1,1}}\right)}$$

$$\left(\frac{1}{j\omega C_{1,1}} + \frac{1}{j\omega C_{1,2}}\right) - \frac{g_{m}}{\omega^{2} C_{1,1} C_{1,2}} = \frac{V_{X}}{i_{X}} = Z$$
(5.5)

よって式 (5.5) より、ピアース発振回路は等価抵抗 $(R_{\rm Series}=-rac{gm}{\omega^2 c_{1,1} c_{1,2}})$ と合成キャパシタンス $(C_0=rac{1}{\left(rac{1}{C_{1,1}}+rac{1}{C_{1,2}}
ight)})$ の直列接続回路として表現可能となる。以上より、クラップ発振回

路の等価回路図を導くことができた (Figure 5.9c). 次に,この等価回路を並列型 LCR 共振器として表現することを考える. Figure 5.10 に各回路変形過程を示す.

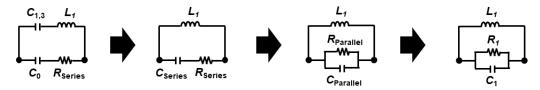


Figure 5.10 Equivalent circuit transformation of the LCR resonator.

まず、クラップ発振回路の合成キャパシタンスは、 $C_{Series} = \frac{1}{\left(\frac{1}{c_{1,1}} + \frac{1}{c_{1,2}} + \frac{1}{c_{1,3}}\right)}$ のように変換可能

であり、 R_{Series} に直列接続されたキャパシタンスとして取り扱うことができる.このとき、インダクタンス(L_1)に接続された素子は、インピーダンス(Z)として定義できる.

$$Z = \frac{1}{j\omega C_{\text{Series}}} + R_{\text{Series}} \tag{5.6}$$

次に、式(5.6)をアドミタンス形式に変換すると以下の式が得られる.

$$Y = \frac{1}{\frac{1}{j\omega C_{\text{Series}}} + R_{\text{Series}}}$$

$$= \frac{1}{R_{\text{Series}} \left\{ 1 + \left(\frac{1}{\omega R_{\text{Series}} C_{\text{Series}}} \right)^{2} \right\} + \frac{1}{j\omega C_{\text{Series}}} \left\{ 1 + (\omega R_{\text{Series}} C_{\text{Series}})^{2} \right\}}$$
(5.7)

ここで、式 (5.7) は以下のように定義することができ、並列型のレジスタンス (R_1) およびキャパシタンス (C_1) として扱うことができる.

$$Y = \frac{1}{R_1} + j\omega C_1 \tag{5.8}$$

$$\begin{cases}
R_1 = R_{Series} \left\{ 1 + \left(\frac{1}{\omega R_{Series} C_{Series}} \right)^2 \right\} \\
C_1 = \frac{C_{Series}}{\{ 1 + (\omega R_{Series} C_{Series})^2 \}}
\end{cases}$$
(5.9)

以上より、クラップ発振回路は、 $L_1/C_1/R_1$ を用いた並列型 LCR 共振器として取り扱うことができる。また、 $R_{\rm Series}=-\frac{gm}{\omega^2 C_{1,1} C_{1,2}}$ より、クラップ発振回路のレジスタンス(R_1)は常に負性抵抗を示すことが分かる。

次に、上述したパラメータを用いて実際に作製したゲイン共振器(クラップ発振回路)の外観図と入力インピーダンスを Figure 5.11 に示す。このゲイン共振器の負性抵抗 (R_1) は、MOSFET に印加する電圧 (V_{G1},V_{G2}) により調整可能である。ここでゲイン共振器の調整機能を評価するため、 V_{G2} を固定し $(V_{G2}=6.0\,\mathrm{V})$ 、 V_{G1} を変化させた $(V_{G1}=4.0\sim6.5\,\mathrm{V})$ ときのインピーダンス変化を確認した (Figure 5.11b)。このとき、インピーダンス実部成分 $(\mathrm{Re}(Z_{\mathrm{in}}))$ は $-17545\,\Omega$ から $-773\,\Omega$ に変化し、共振周波数は88.08 MHzから88.29 MHzに変化した。以上の結果より、本項で作製したゲイン共振器は、印加電圧に応じて負性抵抗値と共振周波数を調整可能であること分かった。以降の実験において、PT 対称性を構築する場合はこのゲイン共振器を用いることとする。

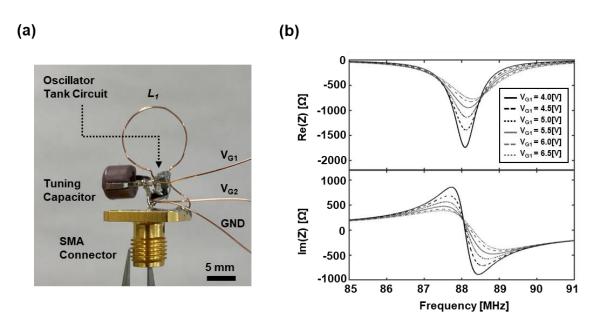


Figure 5.11 (a) A photograph of the gain reader and (b) impedance. The figure shows the input impedance vs. frequency at different applied voltage on the MOSFET.

5.3.2 ロス共振器の設計と作製

前項では、ゲイン-ロス結合に使用するゲイン共振器(リーダー側)を作製した。本項では、ロス-ロス結合に使用するロス共振器(リーダー側とセンサ側)を作製する。Figure 5.12 に、これらの回路図、外観図、インピーダンス特性を示す。ここで、各共振器を構成する電子素子のパラメータは以下の通りである:レジスタンス($R_{2,1}=3.3\,\mathrm{k}\Omega$)、インダクタンス($L_n=32\,\mathrm{nH}$)、キャパシタンス($C_n=100+2.5\sim7\,\mathrm{pF}$)、ただし、 C_n はチューニングキャパシタ(CVN6070)により調整可能である。ここで、ロス共振器(リーダー側)は、リアクタンス素子(L_1,C_1)のみにより構成されるが、実際のインピーダンス実部成分は、共振時にRe(Z_{in}) = 1.4 k Ω を示した(Figure 5.12c)。これは、各リアクタンス素子に存在する寄生抵抗が、並列型 LC 共振器のレジスタンス成分として現れたためである。次に、ロス共振器(センサ側)は、リアクタンス素子(L_2,C_2)とレジスタンス素子($R_{2,1}$)により構成される。このとき、実際の回路は、 $L_2/C_2/R_2$ の並列型共振器として扱うことができ(Figure 5.12d)、共振時の入力インピーダンスRe(Z_{in}) = 1.0 k Ω を示した(Figure 5.12f)。このロス共振器(センサ側)は、第4章で作製したパッシブ型バイオセンサを模したものであり、疑似的なセンサ側共振器として使用する。

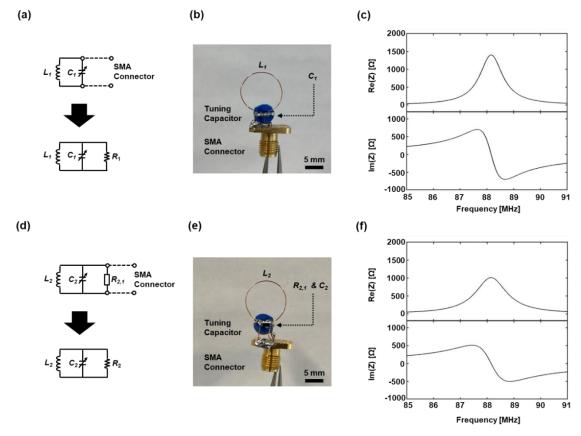


Figure 5.12 Equivalent circuit diagrams, photographs, and the performance of (a-c) reading loss resonator and (d-f) sensing loss resonator.

The figures show the input impedance vs. frequency.

5.3.3 パリティ-時間対称性の実装と評価

ここまで、パリティ-時間対称性を構築するためのゲイン共振器(リーダー側)、ロス共振 器(リーダー側とセンサ側)を実装した.本項では、これら共振器を用いて、ゲイン-ロス 結合およびロス-ロス結合を実験的に構築し,PT 対称性を有する磁界共鳴結合系と既存の 磁界共鳴結合系の特性を比較する. Figure 5.13 は, それぞれの系を構築する回路図である. このとき, PT 対称性を有する磁界共鳴結合系には, ゲイン共振器 (リーダー側) とロス共 振器 (センサ側) を用いた (Figure 5.13a). ここで, 共振器間の距離を 10~17 mm に変更 したときの入力インピーダンス実測値を Figure 5.14a-b に示す. この図より, 共振器間の距 離(d)が短くなるにつれ,入力インピーダンスの共振周波数が分離していく様子が見て取 れる. これは, 項 (5.2.1) で解説した Broken-PT から Exact-PT への変遷を表しており, この結果から(15.5 mm > d > 15 mm)の範囲に EP があると推定される. 一方, 既存の磁 界共鳴結合系には、ロス共振器 (リーダー側) とロス共振器 (センサ側) を使用した (Figure 5.13b). ここで、共振器間の距離を $10\sim17~\mathrm{mm}$ に変更したときの入力インピーダンスを Figure 5.14c-d に示す. また、この周波数特性を拡大表示したものを Figure 5.14e-f に示す. これらの図より、PT 対称性が満たされていない既存の磁界共鳴結合系では、非常に小さく 緩やかなインピーダンス変化が確認できる.また,PT 対称性の場合と同様,共振器間の距 離(d)が短くなるにつれ、入力インピーダンスの共振周波数が分離していく様子が見て取 れる.これは、項(5.2.1)で議論した磁界共鳴結合系における強結合領域を意味しており、 周波数分離のポイントは (d=17 mm) 付近にあることが分かる. 以上の実験結果より, PT対称性を有する磁界共鳴結合系と既存の磁界共鳴結合系に関して、共振器間の距離を変化 させたときの入力インピーダンス変化を分析することができた.

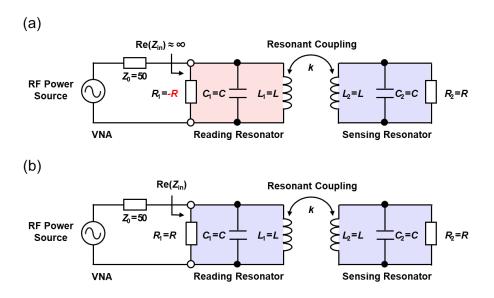


Figure 5.13 Circuit diagrams of (a) gain-loss and (b) loss-loss resonant coupling system.

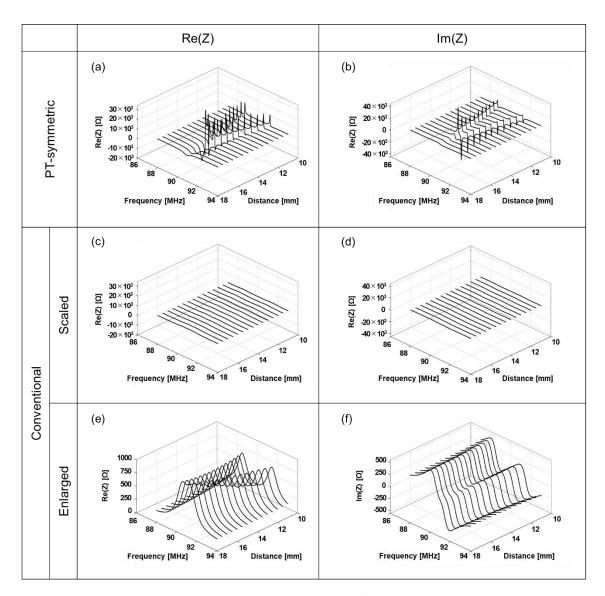


Figure 5.14 Changes in the input impedance of (a-b) the PT symmetric, and (c-d) the conventional resonant coupling systems as a function of frequency and the radiation distance. (e-f) shows the enlarged views of (c-d).

次に、PT 対称性が磁界共鳴結合系に及ぼす影響について、スミスチャートを用いた考察を行う。 Figure 5.15a は、共振器間の距離を d_{EP} 付近に設定したときの、磁界共鳴結合系の周波数特性を示した図である。ここで、赤色実線は PT 対称性を、黒色実線は既存の磁界共鳴結合系を示す。この図より、並列型 LCR 共振結合系に PT 対称性を導入することによって、スミスチャート上のレジスタンス成分が右側にシフトすることが分かる。これは、共振周波数において結合系の入力インピーダンス実部が開放(OPEN)状態に近づくこと($Re(Z_{in}) \approx \infty$)を意味している(開放状態について定在波比を用いた解釈は付録 A に記載).

ここで、項(5.1.2)で解説したように、並列型 LCR 共振器における Q 値の改善は、レジスタンス成分(R)の極大化により達成可能であることを思い返してほしい.ここで得られた $Re(Z_{in})\approx\infty$ という特性は、磁界共鳴結合系における Q 値の向上を意味する.次に、これらの結果をインピーダンス上にプロットした図を Figure 5.15b に示す.ここで、赤色の実線と破線は PT 対称性磁界共鳴結合系における $Re(Z_{in})$ と $Im(Z_{in})$ を表している.また、黒色の実線と破線は既存の磁界共鳴結合系における $Re(Z_{in})$ と $Im(Z_{in})$ を表している.この図から、既存の結合系では共振周波数付近で緩やか、かつ小さなインピーダンス変化が確認できるのに対して、PT 対称性を満たす結合系では非常に急峻かつ、大きなインピーダンス変化が観測できる.以上より、PT 対称性の導入によって結合系は無損失に極めて近い状態を作ることができ、かつ共振周波数付近において、非常に高い周波数選択性を持つことが分かった.最後に、PT 対称性を満たす並列型 LCR 共振結合系とセンサ側の LCR 共振器単体を比較した場合の Q 値の差について説明する.共振回路の Q 値は、インピーダンス実部成分を使って算出可能であり、以下の式(5.10)により求めることができる[54].

$$Q = \frac{f_0}{|f_{\text{FWHM2}} - f_{\text{FWHM1}}|} \tag{5.10}$$

ここで、 $|f_{\text{FWHM2}} - f_{\text{FWHM1}}|$ は半値幅を意味しており、 f_0 は動作周波数を表している。この式 (5.10) を使って、ロス共振器(センサ側)と PT 対称性を満たす磁界共鳴結合系の Q 値 を算出した結果は以下の通りであった: $Q_{\text{PT}} = 7753.3$ 、 $Q_{\text{Sens}} = 62.1$. この結果から、PT 対 称性を導入した無線計測系では約 125 倍の Q 値改善が行われたと言える.

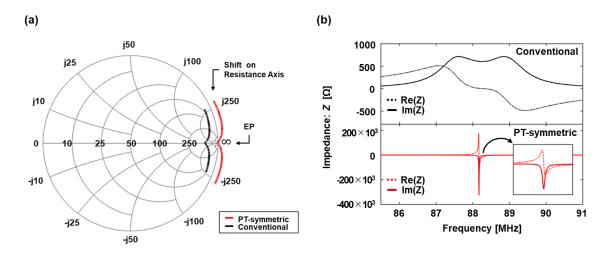


Figure 5.15 (a) Smith chart and (b) the input impedance of the PT-symmetric (red) and the conventional (black) resonant coupling systems.

5.4 パリティ-時間対称性を用いた生化学情報の無線計測

前節では、PT 対称性の実験的証明を行うことで、並列型 LCR 共振結合系において Q 値が大幅に改善されることを明らかにした。また、EP におけるインピーダンス特性が $Re(Z_{in}) \approx \infty$ を示すこと、ならびに EP からの摂動が特異的に大きくなることを数値解析により確認した。本節では、これらのシミュレーション結果を元に、第 4 章で作製したパッシブ型バイオセンサを用いて無線計測実験を行う。また、PT 対称性の導入によって向上した振幅変調度を定量的に解析することでセンサ感度の改善を示す。

5.4.1 涙中グルコースの無線計測

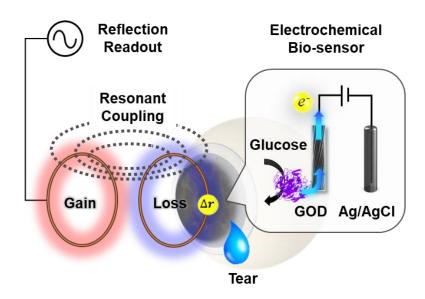


Figure 5.16 Schematic illustration of sensitive, wireless readout of tear glucose based on the PT-symmetric resonant coupling system.

Figure 5.16 は、本項で実施する PT 対称性を用いた涙中グルコースの無線計測を示した概要図である。本システムの動作原理は、第4章で実証したワイヤレス・バイオセンシングと同様である。ネットワークアナライザで直接読み取る被試験対象はリーダーであるゲイン共振器であり、このリーダーは高周波磁界によりパッシブ型グルコースセンサと結合している。一方、パッシブ型グルコースセンサでは、検出対象であるグルコースに合わせた化学抵抗器の抵抗変化(Δr)が発生し、結果として LCR 共振器の振幅変調(AM)が促される。従って、パッシブ型バイオセンサで発生した抵抗値変化(Δr)は、間接的にリーダー側の入力インピーダンス実部成分($Re(Z_{in})$)に影響を及ぼす。本項では、まず項(5.2.3)で作製した磁界共鳴結合系の入力インピーダンスに関する式(5.3)を用いて、第4章で実施した既存系(ロス-ロス結合)における振幅変調度をシミュレーションする。その後、PT 対称性を導入した結合系について同様の数値解析を行い、センサ感度の向上を定量的に示す。

Figure 5.17 は入力インピーダンス実部の初期値($\operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}(0)})$)に対する相対的な変化率 $(\left|\Delta \operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}})/\operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}(0)})\right|)$ を示す図であり、パッシブ型グルコースセンサの抵抗変化量 (Δr) に対する振幅変調度をシミュレーションした結果である. ここで, システムの変化量は $\Delta \mathrm{Re}(Z_{\mathrm{in}}) = \left| \mathrm{Re}(Z_{\mathrm{in(i)}}) - \mathrm{Re}(Z_{\mathrm{in(0)}}) \right|, パッシブ型グルコースセンサで得られる化学抵抗器の$ 変化は $\Delta r = \left|R_{2(i)} - R_{2(0)}\right|$ と定義する.また,パッシブ型グルコースセンサの初期レジスタ ンス成分は $R_{2(0)}=1$ k Ω とした。このとき、各数値解析で用いたシステム構成とパラメータ は以下の通りである:PT-symmetric at EP (ゲイン-ロス結合, $k/k_{EP}=1$), Broken PTsymmetric (ゲイン-ロス結合, $k/k_{\rm EP}=0.9972,~k/k_{\rm EP}=0.9887$),Conventional (ロス-ロ ス結合, $k/k_{\rm FP}=1$). まず, EP を実現する PT 対称性結合系 (赤色実線) について, Δr が 0 から 0.5 Ωに変化する範囲で, 入力インピーダンス実部の相対変化率は急激に増加するこ とが分かる (ピンク色塗りつぶし部分). しかしながら、その後は、変化率の増加傾向が減 衰していき, $|\Delta \operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}})/\operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}(0)})| = 100\,\%$ に収束する様子が見て取れる.この結果から, EP 上ではセンサ側の抵抗変化量(Δr)が微弱な場合のみ,無限大に近い入力インピーダン ス実部の変化(振幅変調度)が得られることが分かった. これは, 項(5.2.3)でも解説した ように、リーダー側とセンサ側でゲインとロスの釣り合いが保たれている状態(EP)から、 ゲインとロスの均衡が崩壊する変遷を表しており,EP 付近において,振幅の変化率が顕著 であることを意味している. 次に, Broken 領域にある PT 対称性について考察する. 項(5.2.1) で解説したように、PT 対称性を満たす磁界共鳴結合系は、結合係数(k)の値により、Broken-PT 領域と Exact-PT 領域に分けることができる. そこで, EP の比較対象として, 2 種類の Broken-PT($k/k_{\rm EP}=0.9972$ (黒色実線), $k/k_{\rm EP}=0.9887$ (黒色破線))を設定し,シミュ レーションを行った. その結果, Broken-PT における入力インピーダンス実部の変化率は, ${
m EP}$ の場合と比べて緩やかに増加し、その傾向は $k/k_{
m EP}$ の減少に伴って減衰することが分か った. 特に, $k/k_{\rm EP}=0.9887$ の場合, システムの変化率は線形に近い増加傾向を示している. 一方で, Δr が 0 から 0.5 Ω に変化した場合, $\left|\Delta \mathrm{Re}(Z_{\mathrm{in}})/\mathrm{Re}(Z_{\mathrm{in}(0)})\right| = 2.1$ %を示すことから, 入力インピーダンス実部の変化率は低下していることが分かる.ここで,既存の結合系(青 色実線) においても,グルコース濃度の増加に伴った線形的な変化率が得られるが,Δrが 0 から 0.5 Ω に変化した場合, $|\Delta \text{Re}(Z_{\text{in}})/\text{Re}(Z_{\text{in}(0)})| = 0.02 \%を示すことから,入力インピー$ ダンス実部はほとんど変化しないと言える. これは, センサ側の抵抗変化量(Δr)に対して 振幅の変調度が0に近いことを意味している.

以上、上述したシミュレーション結果より、PT 対称性を満たす結合系においては、入力インピーダンス実部の変化率(振幅変調度)が飛躍的に向上することが分かった。さらに、結合係数 (k) を調整することで変調度の割合が調整可能であることを明らかにした。またこれらの特性を活かすことで、グルコース濃度増加に伴った閾値的応答(EP)やグルコース濃度増加に伴った線形応答(Broken-PT)を得ることができる。これらの結果から、検出対象や用途に合わせた磁界共鳴結合系の応用が期待でき、効果的なワイヤレス・センシングが実現可能になると考える。

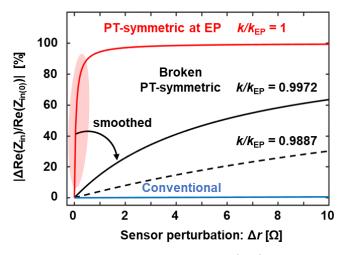


Figure 5.17 Characteristics of the PT-symmetric (red), broken-PT (black), and conventional (blue) system. The figure shows the absolute value of relative change for real part of the input impedance $|\Delta \text{Re}(Z_{in})/\text{Re}(Z_{in(0)})|$ as a function of the sensor perturbation Δr corresponding to the glucose concentration.

次に、実際の共振器を用いた無線計測を行い、シミュレーション結果の検証を行う.実験に使用する共振器は以下の通りである:リーダー側(ゲイン共振器、ロス共振器)、センサ側(パッシブ型グルコースセンサ). ここで、パッシブ型グルコースセンサの初期値は $\operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}})=1085\,\Omega$ を示し、EPを満たす結合係数は以下のように算出された: $k_{\operatorname{EP}}=0.016320$. よって、項(5.2.2)の解析結果を用いれば共振器間(リーダー/センサ)の距離(d_{EP})は約14.9 mm となる.厳密な EP の実現については、ネットワークアナライザ上でインピーダンス特性を確認しながら、共振器間の距離を調整することで達成した.また計測中、パッシブ型グルコースセンサの作用極と対極は、常に可変グルコース溶液に浸された状態にある(Figure 5.18).グルコース濃度の変更については、8 mL の PBS 溶液(0.1 M、pH=7.0)に、高濃度グルコース溶液(0.5 M)を $1.6\,\mu$ L ずつ滴下することで、任意のグルコース濃度($0.1\sim0.6\,\mathrm{mM}$)を調整した.また、このグルコース溶液はマグネチックスターラーを用いて常に攪拌された.

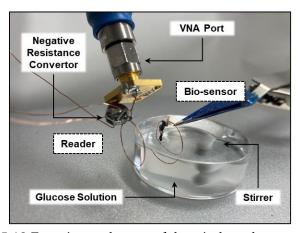


Figure 5.18 Experimental setup of the wireless glucose sensing.

ここで, 既存の磁界共鳴結合系を用いた実験結果については, 第4章の4.4節で解説した 通りであり(Figure 4.17 参照),そのセンサ感度は $1.0~\Omega/0.1~\mathrm{mM}$ であった.次に,ゲイン 共振器をリーダーとして使用し, PT 対称性 (EP) を満たした場合の実験結果を Figure 5.19 に示す.これは,グルコース濃度を $0.1\sim0.6~\mathrm{mM}$ に変化させたときの $\mathrm{Re}(Z_\mathrm{in})$ (周波数掃引 回数 5 回における平均値)を示している.また,各濃度において共振時のRe(Z_{in})をプロッ トした結果を挿入図に示す(周波数掃引回数 5 回における平均値と標準偏差). このとき, 各濃度変化に伴うRe(Z_{in})平均値は以下の通りであった:-677.5 kΩ(0.1 mM),-145.8 kΩ $(0.2 \text{ mM}), -61.2 \text{ k}\Omega (0.3 \text{ mM}), -28.3 \text{ k}\Omega (0.4 \text{ mM}), -24.8 \text{ k}\Omega (0.5 \text{ mM}), -19.4 \text{ k}\Omega (0.6 \text{ mM})$ mM). Figure 4.21 と比較して、入力インピーダンス実部の周波数特性は狭帯域化されてお り,非常に急峻なピーク値を示すことが分かる.とりわけ, $0.1\,\mathrm{mM}$ における $\mathrm{Re}(Z_\mathrm{in})$ の値は -677.5 kΩと大きく, EP に到達していると考えられる. 従って, この初期値においては結合 系が共振周波数にてほとんど無損失 $(Z_{in}pprox\infty)$, かつ高 Q 値を示していると言える. Figure 5.20 は, この周波数特性をスミスチャート上にプロットしたものであり, 右に OPEN $(Re(Z_{in}) = \infty)$ 付近の拡大図を示している. 反射係数の軌跡は, グルコース濃度が初期値 (0.1 mM) のとき, 共振点において OPEN に位置していることが分かる. また, グルコー ス濃度が増加するのに伴って,この軌跡は右上にシフトし,共振点が OPEN から遠ざかる 様子が窺える.ロス共振器から成る従来までの散逸系では,反射係数が OPEN に位置する ことは決してなく、無損失な結合系の実装は不可能であった。しかしながら、PT 対称性と いう概念を用いることで共振周波数における結合系の無損失化が可能となった.次に、 Figure 5.19 の挿入図より、グルコース濃度が $0.1\sim0.2\,\mathrm{mM}$ に変化したとき、 $\mathrm{Re}(Z_{\mathrm{in}})$ の変化 率が特異的に大きくなることが分かる.一方で, 0.2~0.6 mM の範囲ではその変化率が徐々 に緩慢になる傾向を確認した. これは, Figure 5.17 で確認した EP 付近における顕著な $Re(Z_{in})$ の変化率を意味している. さて、グルコース濃度が $0.1 \, \text{mM}$ の場合において、 $Re(Z_{in})$ のエラーバーが比較的大きくなっていることが分かる. これは, 本章で作製したクラップ発 振回路や化学抵抗器における数値的ばらつき (意図しない誤差) が EP において増幅された ことを表しており, 裏を返せば EP 付近でのシステム感度が非常に大きいと言い換えること が出来る. このような EP 付近における大きな計測誤差は他の研究でも報告されており[55], 実験的な回路を扱う上での課題である.しかしながら,このばらつきが機器から発せられる 周期的なノイズであると仮定すれば、複数回の計測結果(周波数掃引)を使って真値の抽出 が可能であると考える.

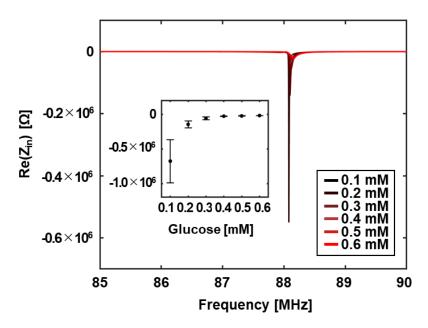


Figure 5.19 Real part of the input impedance $Re(Z_{in})$ (vs. frequency) of the reading resonator coupled with the passive glucose sensor at the fixed glucose concentrations (0.1~0.6 mM). $Re(Z_{in})$ vs. concentration is depicted (inset).

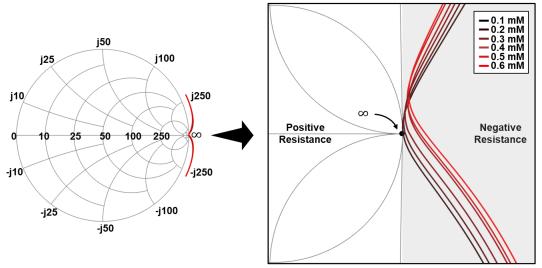


Figure 5.20 Smith chart (left) and the enlarged view (right) of the PT-symmetric system locked to the EP.

次に、ゲイン共振器をリーダーとして使用し、PT 対称性 (Broken-PT 領域上) を満たし た場合の実験を行った. ここで、共振器間(リーダー/センサ)の距離は約 15.0 mm に設定 した. これは、パッシブ型グルコースセンサの初期値が $\operatorname{Re}(Z_{in})=1085\,\Omega$ のとき、結合係数 が $k_{\rm EP}=0.016320$ 以下になるよう設定するためである $(k/k_{\rm EP}<1)$. 厳密な Broken-PT の 実現については, ネットワークアナライザ上でインピーダンス特性を確認しながら, 共振器 間の距離を調整することで達成した. Figure 5.21 は、グルコース濃度を 0.1~0.6 mM に変 化させたときのRe(Z_{in})(周波数掃引回数 5 回における平均値)であり,各濃度における共 振時のRe(Z_{in})を挿入図に示す(周波数掃引回数 5 回における平均値と標準偏差). ここで, 各濃度変化に伴う $Re(Z_{in})$ の平均値は以下の通りであった:-20.7 $k\Omega$ (0.1mM),-18.1 $k\Omega$ $(0.2 \text{ mM}), -16.1 \text{ k}\Omega (0.3 \text{ mM}), -13.9 \text{ k}\Omega (0.4 \text{ mM}), -12.1 \text{ k}\Omega (0.5 \text{ mM}), -10.6 \text{ k}\Omega (0.6 \text{ mM})$ mM). これより、PT 対称性 (EP) の場合と比較して、 $0.1\,\mathrm{mM}$ における $\mathrm{Re}(Z_\mathrm{in})$ の値は- $677.5\,\mathrm{mM}$ $k\Omega$ から-20.7 $k\Omega$ に低下していることが分かる. 即ち, 共振時の反射係数が OPEN ($Re(Z_{in})$ = ∞) から遠ざかっていると言える. 一方で, グルコース濃度の増加に対しては線形な振幅変 化を示しており、既存の結合系と比較して約2000倍のセンサ感度が確認できた(センサ感 度: $2 \, \mathrm{k} \Omega / 0.1 \, \mathrm{mM}$). Figure 5.22 は,この周波数特性をスミスチャート上にプロットしたも のであり、右に OPEN $(Re(Z_{in}) = \infty)$ 付近の拡大図を示している.この結果より、Broken-PT を使用した無線計測では、センサ感度の向上および線形応答が実現可能であることが分 かった.

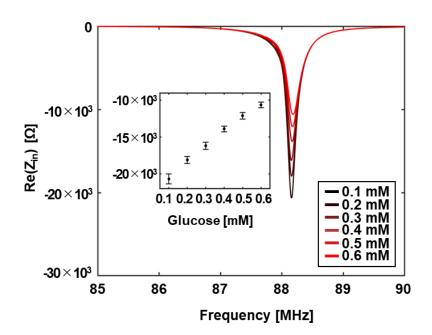


Figure 5.21 Real part of the input impedance $Re(Z_{in})$ (vs. frequency) of the reading resonator coupled with the passive glucose sensor at the fixed glucose concentrations (0.1~0.6 mM). $Re(Z_{in})$ vs. concentration is depicted (inset).

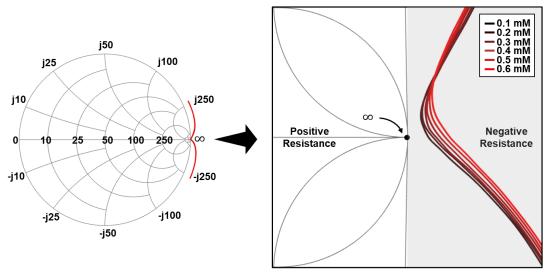


Figure 5.22 Smith chart (left) and the enlarged view (right) of the PT-symmetric system near the EP.

最後に、これらの実験結果を振幅変調度の観点から比較した(Figure 5.23). これは、入力インピーダンス実部の初期値 ($\operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}(0)})$) に対する相対的な変化率($|\Delta\operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}})/\operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}(0)})|$)を示す図であり、グルコースの濃度変化に対応した振幅変調度を表す。丸印は実測値(周波数掃引回数 5 回における $\operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}})$ の平均値),灰色実線はカーブフィッティング(Figure 5.17のシミュレーション結果を応用)を表している。このとき, EP を満たす結合系を赤色丸印,Broken-PT における結合系を黒色丸印,既存の結合系を青色丸印としてプロットした。この図より,PT 対称性を満たす結合系では,既存のロス-ロス結合系に比べて,入力インピーダンス実部の相対変化率(振幅変調度)が飛躍的に向上することが分かる。特に, EP を満たす結合系では,微弱なグルコース濃度の変化($\Delta r = 0.1$ mM)に対して特異的な入力インピーダンス実部の変化が確認でき,その増加傾向は無限大である($|\Delta\operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}})/\operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}(0)})| = 78.47%). これは,既存系の場合(<math>|\Delta\operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}})/\operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}(0)})| = 0.19%)と比べると著しく大きな変化率である。その後,<math>\Delta r = 0.2$ ~0.5 mMにおいては入力インピーダンス実部の相対変化率(振幅変調度)が収束している様子が見て取れる。一方,Broken-PT を満たす結合系ではグルコース濃度の変化に対して入力インピーダンス実部が線形増加を示すことが分かる.

以上、本実験ではパッシブ型グルコースセンサを用いた PT 対称性の実現と、涙中グルコースの無線計測に成功した。また、PT 対称性を満たす磁界共鳴結合系においては、入力インピーダンス実部の変化率(振幅変調度)向上を数値解析および実験により証明することができた。具体的には、振幅変調度の低さから読み取りが困難であった従来型のロス-ロス共振結合系に対して、グルコース濃度増加に伴った閾値的応答(EP)やグルコース濃度増加に伴った線形応答(Broken-PT)を構築することが可能であり、振幅変調度の高い無線計測システムが実現できることが分かった(Figure 5.24).

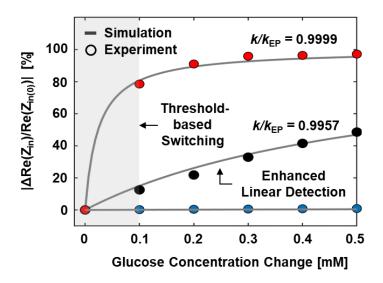


Figure 5.23 Experimental (circle) and simulation fitting (gray line) values of the PT-symmetric (red), broken-PT (black), and conventional (blue) system. The figure shows the absolute value of relative change for real part of the input impedance $|\Delta \text{Re}(Z_{in})/\text{Re}(Z_{in(0)})|$ as a function of the glucose concentration change.

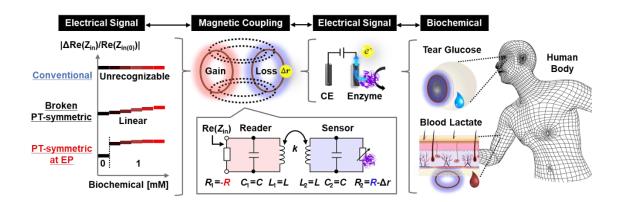


Figure 5.24 Schematic illustration of our wireless biosensing system constituting with magnetic coupling resonators (reader and sensor). The sensor consists of a LC circuit and a chemiresistor which converts biochemicals into resistance changes. The reader consists of a loss LCR circuit for the conventional readout system, alternatively, consists of a gain LCR circuit for the PT-symmetric readout system; the broken PT-symmetric system enhances the sensitivity and realizes linear readout of biochemical concentrations, whereas the PT-symmetric system at EP realizes the threshold-based biochemical sensing.

5.4.2 血中ラクテートの無線計測

本項では、PT 対称性を用いた高感度な無線計測システムを、埋植型デバイスに応用することを目的として、血中ラクテート濃度の効果的な計測方法を提案する。Figure 5.25 は、本項における実験概要図であり、皮膚組織を介した磁界共鳴結合系を示している。ここで、リーダー側はゲイン共振器(項 (5.3.1) 参照)、センサ側はパッシブ型ラクテートセンサ (4.3) 節参照)である。上記の概要図に従い構築した計測システムを Figure 5.26 に示す。図中に示された皮膚組織(厚さ 10.5 mm)は株式会社ケー・エー・シーより購入したものであり、表皮/真皮/皮下脂肪を含む。無線計測実験に際しては、アクリル板の上に脱脂綿付きのパッシブ型ラクテートセンサを設置し、その上に皮膚組織を置いた。このとき、パッシブ型ラクテートセンサの作用極(LOD)および対極((Ag/AgCI))は、脱脂綿に含まれる PBS 溶液((PH=7.0))を介して接続されている。また、パッシブ型ラクテートセンサの初期値は (PH=7.0) を介して接続されている。また、パッシブ型ラクテートセンサの初期値は (PH=7.0) を介して接続されている。また、パッシブ型ラクテートセンサの初期値は (PH=7.0) を介して接続されている。また、パッシブ型ラクテートセンサの初期値は (PH=7.0) を介して接続されている。また、パッシブ型ラクテートセンサの距離 (PH=7.0) は約 (PH=7.0) を満たす結合係数は以下のように算出された:(PH=7.0) を介して接続されている。また、パッシブ型ラクテートセンサの距離 (PH=7.0) は約 (PH=7.0) が (PH=7.0) が (PH=7.0) が (PH=7.0) が (PH=7.0) を満たす結合係数は以下のように算出された:(PH=7.0) なが (PH=7.0) が (PH=7.0) が (PH=7.0) が (PH=7.0) を (PH=7.0)

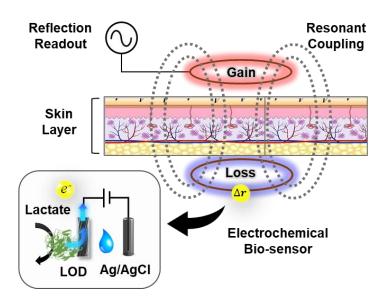


Figure 5.25 Schematic illustration of sensitive, wireless readout of blood lactate based on the PT-symmetric resonant coupling system.

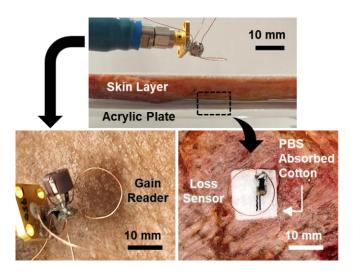


Figure 5.26 Experimental setup of the PT-symmetric readout system via human skin tissue.

本実験ではまず、皮膚組織の有無により、磁界共鳴結合がどのような影響を受けるのかを 確認した. Figure 5.27 は, PT 対称性を有する磁界共鳴結合系の入力インピーダンス実部 (Re(Z_{in}))の実測値を示しており、皮膚組織が無い場合(灰色実線)と有る場合(赤色実線) の比較を目的とした図である. このとき, 皮膚組織が無い状態では, ゲインとロスの釣り合 いがとれており、かつ結合係数がkppに近いことから結合系が EP 付近に到達していること が分かる (共振時の $\operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}}) = -44 \operatorname{k}\Omega$). 一方で、これら共振器間に皮膚組織を挿入すると、 入力インピーダンス実部の振幅が大幅に減衰した(共振時の $Re(Z_{in}) = -11 k\Omega$). これは, 誘電体である皮膚組織により共振器間の誘電率が変化したためである.本研究で作製した 磁界共鳴結合系は, 磁界を主体としたエネルギー伝送を行う一方で, 共振器近傍には固有の 電磁界が分布すると考察される[56]. 従って, 共振器近辺に誘電体が存在する場合において は、誘電損失が発生すると考えられる.この誘電損失を実験的に確かめるため、各共振器に ついて,皮膚組織の挿入前後における入力インピーダンス実部を計測した. Figure 5.28(a) はゲイン共振器、(b)はパッシブ型ラクテートセンサの計測結果であり、皮膚組織が無い場 合(灰色実線)と有る場合(赤色実線)を示している. この結果から、ゲイン共振器につい ては共振時の $\operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}})$ が -1082Ω から -1063Ω に減衰し、パッシブ型ラクテートセンサについ ては共振時の $Re(Z_{in})$ が 1081Ω から 1066Ω に減衰したことが分かる.この結果より,各共振 器から発生した電磁界が皮膚組織内で誘電損失を引き起こしていることが明らかとなった. 一方で, 本研究で作製したゲイン共振器は, 印加電圧により負性抵抗の値を適宜調整可能で ある. この機能を活かすことで, 磁界共鳴結合系において再び EP 状態を作り出すことに成 功した(黒色破線).以上の結果から、本研究で作製した磁界共鳴結合系においては共振器 間に誘電体(皮膚組織)が存在しても、PT 対称性(EP)を構築することができ、なおかつ 振幅変調度の再調整が可能であると言える.このような特性を活かすことで,センサ側の抵 抗成分 (共振時の $Re(Z_{in})$) に合わせて、無線計測時のセンサ感度を任意に変更することがで きると考える.

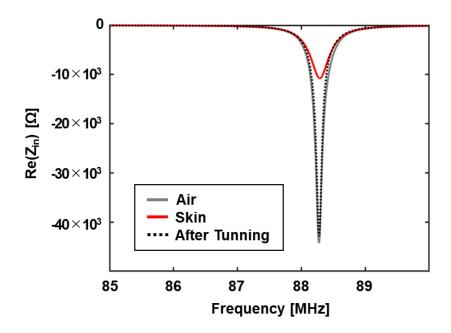


Figure 5.27 Real part of the input impedance $Re(Z_{in})$ (vs. frequency) of the PT-symmetric readout system measured in the air (gray), with human skin (red), after tuning (black).

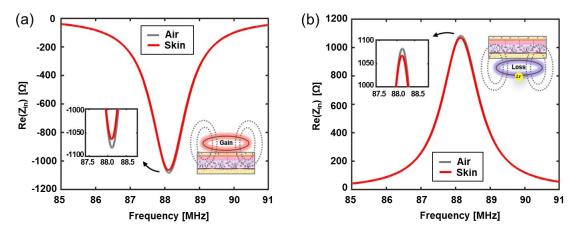


Figure 5.28 (a) Real part of the input impedance $Re(Z_{in})$ (vs. frequency) of the gain reader measured in the air (gray), with the skin (red). (b) Real part of the input impedance $Re(Z_{in})$ (vs. frequency) of the loss lactate sensor measured in the air (gray), with the skin (red).

最後に、第4章で作製したパッシブ型ラクテートセンサを用いて、ラクテート濃度の高 感度無線計測を実施した. 血中ラクテートをバイオマーカーとする敗血症については, 閾値 (2.0 mM) を越えた場合に患者の致死率が上昇するという報告がある. 従って, PT 対称性 を用いた閾値判別型システムを応用することで,2.0mM の血中ラクテートをワイヤレスに 計測可能であると考えた.このようなコンセプトのもとラクテート濃度の変化に伴う入力 インピーダンス実部 $(Re(Z_{in}))$ を計測した. ここで, 閾値型の応答を観測するために, ラク テート濃度が 2.0 mM のときに反射係数が OPEN $(\text{Re}(Z_{\text{in}}) = \infty)$ となるよう,ゲイン共振 器とパッシブ型ラクテートセンサの距離を調整した. 本実験は, 前項で紹介した閾値判別型 グルコース・センシングに酷似しているが、入力インピーダンス実部の応答が少し異なる. 前項のグルコース無線計測では,初期値(0.1 mM)を EP 上に設定したのに対して,ラク テート・センシングでは,閾値(2.0 mM)を EP 上に設定した.これにより,ラクテート濃 度が 0~4.0 mM に変化する過程で, インピーダンス実部 (Re(Z_{in})) の符号は閾値 (2.0 mM) を境に反転する(Figure 5.29). このような符号の反転現象を視覚的に示した図が Figure 5.30 である.これは,本実験結果をスミスチャート上にプロットしたものであり,右に $OPEN(Re(Z_{in}) = \infty)$ 付近の拡大図を示している. この図より, 反射係数の軌跡がラクテ ート濃度の増加に伴い右上にシフトしている様子が窺える. ここで、 $OPEN(Re(Z_{in}) = \infty)$ を基準とした場合,左側の円内部では正の $\operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}})$,右側の円外部では負の $\operatorname{Re}(Z_{\operatorname{in}})$ が観測さ れることから,本システムの反射係数は EP を通過しながら,その極性符号を反転させるよ うな振る舞いを示すことが分かる. この仕組みを活用することで, ラクテート濃度が 0~2.0 mM の範囲においては正の $\mathrm{Re}(Z_{\mathrm{in}}),\ 2.0 \sim 4.0\ \mathrm{mM}$ の範囲においては負の $\mathrm{Re}(Z_{\mathrm{in}})$ を示すよう な磁界共鳴結合系が構築可能であると言える. これは, センサ側の微弱な抵抗変化に応じて, 符号をスイッチさせるような特性を示すため,異常検知などを想定したバイオデバイスに 応用可能であると考える.

以上、本節では PT 対称性を用いた高感度な無線計測システムを埋植型デバイスに応用することを目指し、皮膚組織を用いた実験評価を行った。特に、誘電体が存在する場合の磁界共鳴結合系の振る舞いや、ゲイン共振器を用いた振幅変調度の調整機能は生体近くで動作する無線式バイオデバイスを開発する上で有益な知見であると考える。また、EP 付近における特異的な入力インピーダンス実部 $(Re(Z_{in}))$ の変化を応用することで、閾値型の無線計測方法を提案することができた。また、その実施例として血中ラクテート濃度の効果的な無線計測に成功した。

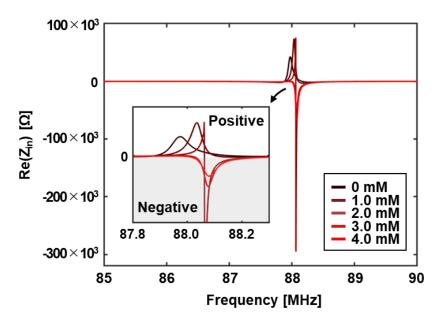


Figure 5.29 Real part of the input impedance $Re(Z_{in})$ (vs. frequency) of the reading resonator coupled with the passive lactate sensor at the fixed lactate concentrations (0~4.0 mM). The enlarged view is depicted (inset).

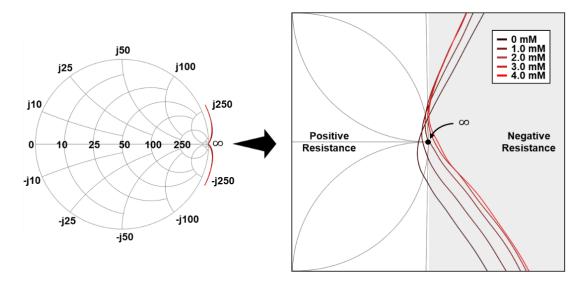


Figure 5.30 Smith chart (left) and the enlarged view (right) of the PT-symmetric system functioning as the threshold-type lactate sensor.

5.5 おわりに

以上, 本章では PT 対称性を満たす磁界共鳴結合系の実装と, 第4章の成果であるパッシ ブ型バイオセンサを組み合わせた高感度な無線計測を実証した. 具体的には, センサ感度に 影響を及ぼす Q 値の改善を目的として,磁界共鳴結合系の無損失化を図った.また,これ を実現するための手法として PT 対称性を導入し, 数値解析(固有値, 入力インピーダンス) や実験による概念実証を成し遂げた. その結果, LCR 並列型の共振結合系において, 入力 インピーダンス実部の変化率(振幅変調度)を特異的に向上させることができた. さらに, パッシブ型グルコースセンサとの組み合わせにより、涙中グルコース濃度の無線計測と振 幅変調度, 即ちセンサ感度の向上に成功した. この結果, これまで振幅変調度の低さから読 み取りが困難であった従来型ロス-ロス共振結合系と比較して,グルコース濃度増加に伴っ た閾値的応答 (EP) やグルコース濃度増加に伴った線形応答 (Broken-PT) を示す共振結合 系が構築可能であることを示した.PT 対称性の実現においては,センサ側共振器に合わせ たゲイン共振器を作製する必要があるが、これは言い換えれば、センサ側共振器の特性をそ のままに、振幅変調度の向上が可能であることを意味する. よって、体内で短期的に駆動す る生分解性センサや、消耗品として使用するバイオセンサなどにとっては有益な技術であ ると言える. 加えて、ゲイン共振器のチューニング性能を活かすことで、皮膚組織などの誘 電体に対してロバスト性が確保できるため、埋植型デバイスへの応用も期待できる.以上よ り、本研究成果は LCR 共振器を基盤とした様々なセンサへの応用が期待でき、かつ振幅変 調度の向上あるいは調整が可能であるという点から有用性の高い技術であると言える.

5.6 参考文献

- [1] Qing-An Huang; Lei Dong; Li-Feng Wang, "LC Passive Wireless Sensors Toward a Wireless Sensing Platform: Status, Prospects, and Challenges", *Journal of Microelectromechanical Systems*, Vol. 25, Issue 5, 2016.
- [2] Chen Li, Qiulin Tan, Pinggang Jia, Wendong Zhang, Jun Liu, Chenyang Xue, Jijun Xiong, "Review of Research Status and Development Trends of Wireless Passive LC Resonant Sensors for Harsh Environments", Sens., Vol. 15, Issue 6, 2015.
- [3] Sadaf Charkhabi, Kyle J. Jackson, Andee M. Beierle, Adam R. Carr, Eric M. Zellner, Nigel F. Reuel, "Monitoring Wound Health through Bandages with Passive LC Resonant Sensors", ACS Sens., Vol. 6, Issue 1, 2021.
- [4] Hairong Kou, Lei Zhang, Qiulin Tan, Guanyu Liu, Helei Dong, Wendong Zhang, Jijun Xiong, "Wireless wide-range pressure sensor based on graphene/PDMS sponge for tactile monitoring", *Sci. Rep.*, Vol. 9, 3916, 2019.
- [5] Lisa Y Chen, Benjamin C-K Tee, Alex L Chortos, Gregor Schwartz, Victor Tse, Darren J Lipomi, H-S Philip Wong, Michael V McConnell, Zhenan Bao, "Continuous wireless pressure monitoring and mapping with ultra-small passive sensors for health monitoring and critical care", *Nat. Commun.*, Vol. 5, 5018, 2014.
- [6] Peter Tseng, Bradley Napier, Logan Garbarini, David L. Kaplan, Fiorenzo G. Omenetto, "Functional, RF-Trilayer Sensors for Tooth-Mounted, Wireless Monitoring of the Oral Cavity and Food Consumption", Adv Mater., Vol. 30, Issue 18, 2018.
- [7] Joohee Kim, Jaeyoon Kim, Minjae Ku, Eunkyung Cha, Seoyoung Ju, Won Yeong Park, Ki Hean Kim, Dai Woo Kim, Per-Olof Berggren, Jang-Ung Park, "Intraocular Pressure Monitoring Following Islet Transplantation to the Anterior Chamber of the Eye", *Nano Lett.*, Vol. 20, Issue 3, 2020.
- [8] Simiao Niu, Naoji Matsuhisa, Levent Beker, Jinxing Li, Sihong Wang, Jiechen Wang, Yuanwen Jiang, Xuzhou Yan, Youngjun Yun, William Burnett, Ada S. Y. Poon, Jeffery B.-H. Tok, Xiaodong Chen & Zhenan Bao, "A wireless body area sensor network based on stretchable passive tags", *Nat. Electron.*, Vol. 2, 2019.
- [9] Kyungmin Na, Hyunggun Ma, Jihun Park, J. Yeo, Jang-Ung Park, F. Bien, "Graphene-Based Wireless Environmental Gas Sensor on PET Substrate", *IEEE Sens. J.*, Vol. 16, Issue 12, 2016.
- [10] Xian Huang, Yuhao Liu, Huanyu Cheng, Woo-Jung Shin, Jonathan A. Fan, Zhuangjian Liu, Ching-Jui Lu, Gil-Woo Kong, Kaile Chen, Dwipayan Patnaik, Sang-Heon Lee, Sami Hage-Ali, Yonggang Huang, John A. Rogers, "Materials and Designs for Wireless Epidermal Sensors of Hydration and Strain", Adv. Funct. Mater., Vol. 24, Issue 25, 2014.

- [11] Flurin Stauffer, Qiang Zhang, Klas Tybrandt, Byron Llerena Zambrano, Julian Hengsteler, André Stoll, Camill Trüeb, Michael Hagander, Jean-Marc Sujata, Felix Hoffmann, Joy Schuurmans Stekhoven, Josefine Quack, Hannes Zilly, Johannes Goedejohann, Marc P. Schneider, Thomas M. Kessler, William R. Taylor, Roland Küng, János Vörös, "Soft Electronic Strain Sensor with Chipless Wireless Readout: Toward Real-Time Monitoring of Bladder Volume", *Adv. Mater. Technol.*, Vol. 3, Issue 6, 2018.
- [12] Joohee Kim, Mi-Sun Lee, Sangbin Jeon, Minji Kim, Sungwon Kim, Kukjoo Kim, Franklin Bien, Sung You Hong, Jang-Ung Park, "Highly Transparent and Stretchable Field-Effect Transistor Sensors Using Graphene-Nanowire Hybrid Nanostructures", Adv. Mater., Vol. 27, Issue 21, 2015.
- [13] M. Hossein M. Kouhani, Jiajia Wu, Arman Tavakoli, Arthur J. Weber, Wen Lia, "Wireless, passive strain sensor in a doughnut-shaped contact lens for continuous noninvasive self-monitoring of intraocular pressure", *Lab Chip.*, 20, 2020.
- [14] Joohee Kim, Minji Kim, Mi-Sun Lee, Kukjoo Kim, Sangyoon Ji, Yun-Tae Kim, Jihun Park, Kyungmin Na, Kwi-Hyun Bae, Hong Kyun Kim, Franklin Bien, Chang Young Lee, Jang-Ung Park, "Wearable smart sensor systems integrated on soft contact lenses for wireless ocular diagnostics", *Nat. Commun.*, Vol. 8, 14997, 2017.
- [15] Jihun Park, Joohee Kim, Kukjoo Kim, So-Yun Kim, Woon Hyung Cheong, Kyeongmin Park, Joo Hyeb Song, GyeongHo Namgoong, Jae Joon Kim, Jaeyeong Heo, Franklin Bien, Jang-Ung Park, "Wearable, wireless gas sensors using highly stretchable and transparent structures of nanowires and graphene", *Nanoscale*, 8, 2016.
- [16] Shiyi Liu, Carolina Moncion, Jianwei Zhang, Lakshmini Balachandar, Dzifa Kwaku, Jorge J. Riera, John L. Volakis, Junseok Chae, "Fully Passive Flexible Wireless Neural Recorder for the Acquisition of Neuropotentials from a Rat Model", *ACS Sens.*, Vol. 4, Issue 12, 2019.
- [17] Hu Tao, Mark A. Brenckle, Miaomiao Yang, Jingdi Zhang, Mengkun Liu, Sean M. Siebert, Richard D. Averitt, Manu S. Mannoor, Michael C. McAlpine, John A. Rogers, David L. Kaplan, Fiorenzo G. Omenetto, "Silk-Based Conformal, Adhesive, Edible Food Sensors", Adv. Mater., Vol. 24, Issue 8, 2012.
- [18] Robert Herbert, Saswat Mishra, Hyo-Ryoung Lim, Hyoungsuk Yoo, Woon-Hong Yeo, "Fully Printed, Wireless, Stretchable Implantable Biosystem toward Batteryless, Real-Time Monitoring of Cerebral Aneurysm Hemodynamics", *Adv. Sci.*, Vol. 6, Issue 18, 2019.
- [19] Manu S. Mannoor, Hu Tao, Jefferson D. Clayton, Amartya Sengupta, David L. Kaplan, Rajesh R. Naik, Naveen Verma, Fiorenzo G. Omenetto, Michael C. McAlpine, "Graphene-based wireless bacteria detection on tooth enamel", *Nat. Commun.*, Vol. 3, 763, 2012.

- [20] Clementine M. Boutry, Levent Beker, Yukitoshi Kaizawa, Christopher Vassos, Helen Tran, Allison C. Hinckley, Raphael Pfattner, Simiao Niu, Junheng Li, Jean Claverie, Zhen Wang, James Chang, Paige M. Fox, Zhenan Bao, "Biodegradable and flexible arterial-pulse sensor for the wireless monitoring of blood flow", *Nat. Biomed. Eng.*, Vol. 3, 2019.
- [21] Aleksi Palmroth, Timo Salpavaara, Petri Vuoristo, Sanna Karjalainen, Tommi Kääriäinen, Susanna Miettinen, Jonathan Massera, Jukka Lekkala, Minna Kellomäki, "Materials and Orthopedic Applications for Bioresorbable Inductively Coupled Resonance Sensors", ACS Appl. Mater. Interfaces, Vol. 12, Issue 28, 2020.
- [22] Di Lu, Ying Yan, Raudel Avila, Irawati Kandela, Iwona Stepien, Min-Ho Seo, Wubin Bai, Quansan Yang, Chenhang Li, Chad R. Haney, Emily A. Waters, Matthew R. MacEwan, Yonggang Huang, Wilson Z. Ray, John A. Roger, "Bioresorbable, Wireless, Passive Sensors as Temporary Implants for Monitoring Regional Body Temperature", Adv. Healthc. Mater., Vol. 9, Issue 16, 2020.
- [23] Carl M. Bender, Stefan Boettcher, "Reaal Spectra in Non-Hermitian Hamiltonians Having PT Symmetry", *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 80, Issue 24, 1998.
- [24] Carl M Bender (2019), "Pt Symmetry: In Quantum And Classical Physics", World Scientific Pub Co Inc.
- [25] Ş. K. Özdemir, S. Rotter, F. Nori, L. Yang, "Parity-time symmetry and exceptional points in photonics", *Nat. Mater.*, Vol. 18, 2019.
- [26] Mohammad-Ali Miri, Andrea Alù, "Exceptional points in optics and photonics", *Science*, Vol. 363, Issue 6422, 2019.
- [27] Xuefeng Zhu, Hamidreza Ramezani, Chengzhi Shi, Jie Zhu, Xiang Zhang, "PT-Symmetric Acoustics", *Phys. Rev. X* 4, 031042, 2014.
- [28] Carl M. Bender, Bjorn K. Berntson, David Parker, E. Samuel, "Observation of PT phase transition in a simple mechanical system", *Am. J. Phys.*, 81, 2013.
- [29] A Guo, G J Salamo, D Duchesne, R Morandotti, M Volatier-Ravat, V Aimez, G A Siviloglou, D N Christodoulides, "Observation of PT-symmetry breaking in complex optical potentials", *Phys Rev Lett.*, 103, 093902, 2009.
- [30] B. Peng, Ş. K. Özdemir, S. Rotter, H. Yilmaz, M. Liertzer, F. Monifi, C. M. Bender, F. Nori, L. Yang, "Loss-induced suppression and revival of lasing", *Science*, Vol. 346, Issue 6207, 2014.
- [31] Alois Regensburger, Christoph Bersch, Mohammad-Ali Miri, Georgy Onishchukov, Demetrios N. Christodoulides, Ulf Peschel, "Parity-time synthetic photonic lattices", *Nature*, 488, 2012.

- [32] Liang Feng, Ye-Long Xu, William S Fegadolli, Ming-Hui Lu, José E B Oliveira, Vilson R Almeida, Yan-Feng Chen, Axel Scherer, "Experimental demonstration of a unidirectional reflectionless parity-time metamaterial at optical frequencies", *Nat. Mater.*, 12, 2012.
- [33] Zin Lin, Hamidreza Ramezani, Toni Eichelkraut, Tsampikos Kottos, Hui Cao, and Demetrios N. Christodoulides, "Unidirectional Invisibility Induced by PT-Symmetric Periodic Structures", Phys. Rev. Lett., 106, 213901, 2011.
- [34] Liang Feng, Xuefeng Zhu, Sui Yang, Hanyu Zhu, Peng Zhang, Xiaobo Yin, Yuan Wang, and Xiang Zhang, "Demonstration of a large-scale optical exceptional point structure", *Opt. Express*, Vol. 22, Issue 2, 2014.
- [35] Bo Peng, Şahin Kaya Özdemir, Fuchuan Lei, Faraz Monifi, Mariagiovanna Gianfreda, Gui Lu Long, Shanhui Fan, Franco Nori, Carl M. Bender, Lan Yang, "Parity–time-symmetric whispering-gallery microcavities", *Nat. Phys.*, 10, 2014.
- [36] Long Chang, Xiaoshun Jiang, Shiyue Hua, Chao Yang, Jianming Wen, Liang Jiang, Guanyu Li, Guanzhong Wang, Min Xiao, "Parity–time symmetry and variable optical isolation in active–passive-coupled microresonators", *Nat. Photonics*, 8, 2014.
- [37] Zongfu Yu & Shanhui Fan, "Complete optical isolation created by indirect interband photonic transitions", *Nat. Photonics*, 3, 2009.
- [38] Zi Jing Wong, Ye-Long Xu, Jeongmin Kim, Kevin O'Brien, Yuan Wang, Liang Feng, Xiang Zhang, "Lasing and anti-lasing in a single cavity", *Nat. Photonics*, 10, 2016.
- [39] Y. D. Chong, Li Ge, and A. Douglas Stone, "PT-Symmetry Breaking and Laser-Absorber Modes in Optical Scattering Systems", *Phys. Rev. Lett.*, 106, 093902, 2012.
- [40] Bo Peng, Şahin Kaya Özdemir, Matthias Liertzer, Weijian Chen, Johannes Kramer, Huzeyfe Yılmaz, Jan Wiersig, Stefan Rotter, Lan Yang, "Chiral modes and directional lasing at exceptional points", *PNAS*, Vol. 113, Issue 25, 2016.
- [41] Weijian Chen, Şahin Kaya Özdemir, Guangming Zhao, Jan Wiersig, Lan Yang, "Exceptional points enhance sensing in an optical microcavity", *Nature*, 548, 2017.
- [42] Hossein Hodaei, Absar U. Hassan, Steffen Wittek, Hipolito Garcia-Gracia, Ramy El-Ganainy, Demetrios N. Christodoulides, Mercedeh Khajavikhan, "Enhanced sensitivity at higher-order exceptional points", *Nature*, 548, 2017.
- [43] Zhong-Peng Liu, Jing Zhang, Şahin Kaya Özdemir, Bo Peng, Hui Jing, Xin-You Lü, Chun-Wen Li, Lan Yang, Franco Nori, Yu-xi Liu, "Metrology with PT-Symmetric Cavities: Enhanced Sensitivity near the PT-Phase Transition", *Phys. Rev. Lett.*, 117, 110802, 2016.
- [44] Mohamed Farhat, Minye Yang, Zhilu Ye, Pai-Yen Chen, "PT-Symmetric Absorber-Laser Enables Electromagnetic Sensors with Unprecedented Sensitivity", ACS Photonics 7, 8, 2020.

- [45] Pai-Yen Chen, Jeil Jung, "PT Symmetry and Singularity-Enhanced Sensing Based on Photoexcited Graphene Metasurfaces", *Phys. Rev. Applied*, Vol. 5, Issue 6, 064018, 2016.
- [46] Joseph Schindler, Ang Li, Mei C. Zheng, F. M. Ellis, Tsampikos Kottos, "Experimental study of active LRC circuits with PT symmetries", *Phys. Rev. A*, Vol. 84, Issue 4, 040101, 2011.
- [47] Sid Assawaworrarit, Xiaofang Yu, Shanhui Fan, "Robust wireless power transfer using a nonlinear parity–time-symmetric circuit", *Nature*, 546, 7658, 2017.
- [48] Maryam Sakhdari, Mehdi Hajizadegan, Pai-Yen Chen, "Robust extended-range wireless power transfer using a higher-order PT-symmetric platform", *Phys. Rev. Research*, Vol. 2, Issue 1, 013152, 2020.
- [49] Jiali Zhou, B. Zhang, W. Xiao, D. Qiu, Yanfeng Chen, "Nonlinear Parity-Time-Symmetric Model for Constant Efficiency Wireless Power Transfer: Application to a Drone-in-Flight Wireless Charging Platform", *IEEE Transactions on Industrial Electronics*, Vol. 66, Issue 5, 2019.
- [50] Pai-Yen Chen, Maryam Sakhdari, Mehdi Hajizadegan, Qingsong Cui, Mark Ming-Cheng Cheng, Ramy El-Ganainy & Andrea Alù, "Generalized parity-time symmetry condition for enhanced sensor telemetry", *Nat. Electron.*, 1, 2018.
- [51] Maryam Sakhdari, Mehdi Hajizadegan, Yue Li, Mark Ming-Cheng Cheng, Jonathan C. H. Hung, Pai-Yen Chen, "Ultrasensitive, Parity–Time-Symmetric Wireless Reactive and Resistive Sensors", *IEEE Sensors Journal*, Vol. 18, Issue 23, 2018.
- [52] Zhenya Dong, Zhipeng Li, Fengyuan Yang, Cheng-Wei Qiu, John S. Ho, "Sensitive readout of implantable microsensors using a wireless system locked to an exceptional point", *Nat. Electron.*, 2, 2019.
- [53] Chao Zeng, Yong Sun, Guo Li, Yunhui Li, Haitao Jiang, Yaping Yang, Hong Chen, "Enhanced sensitivity at high-order exceptional points in a passive wireless sensing system", *Opt. Express*, Vol. 27, Issue 20, 2019.
- [54] Reinhard Nopper, Remigius Niekrawietz, Leonhard Reindl, "Wireless Readout of Passive LC Sensors", *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, Vol. 59, Issue 9, 2010.
- [55] Yu-Hung Lai, Yu-Kun Lu, Myoung-Gyun Suh, Kerry Vahala, "Enhanced sensitivity operation of an optical gyroscope near an exceptional point", *Nature*, 576, 2019.
- [56] Masashi Hotta, Akinori Nobu, Takayuki Haruyama, Tohru yuki, Mitsuo Hano, "Effect of Water and/or Dielectric Materials for Resonant Type Wireless Power Transfer System", The Japanese Journal of the Institute of Industrial Applications Engineers, Vol. 2, No. 2, pp. 23-31, 2014.

第6章 結論

近年, 少子高齢化問題や世界的パンデミックの影響により, 医療従事者の負担軽減を目的 とした計測機器の開発や在宅診療を目的とした医療機器のネットワーク化が加速度的に進 められている、とりわけ、これらを実現するためのバイオデバイスは、汎用性や安全性とい った観点から、「無線 | の活用が主流になりつつある、特に、デバイスの電源確保を目的と した無線電力伝送と検出データを外部に出力する無線情報通信は、次世代医療システム (IoMT) を実現するための鍵である. しかしながら, 体表や体内で利用するデバイスにお いては、柔軟性や生体安全性が求められることに加え、如何にしてウェットな環境でデバイ スを駆動させるかという課題が残されていた. そこで本論文では, ウェット環境で駆動可能 な無線式バイオデバイスの開発を目指し,特に眼表で動作するコンタクレンズ型デバイス を開発対象とした.具体的には、磁界共鳴方式を応用した無線式ウェアラブル・デバイスを 開発し, 生体適合性やデバイス性能を評価することを主な研究目的とした. 無線システムに おいては、古典的な共振結合系の実装に加え、量子力学的効果を含むパリティ-時間(PT) 対称性共振結合系という新しい原理の実装に取り組んだ. さらに, 酵素電極と共振器型アン テナを組み合わせたパッシブ型バイオセンサを開発することで,涙中グルコースや血中ラ クテートの濃度変化を無線計測することに成功した. これら成果は、体表・体内で駆動する バイオデバイスの開発において共通する諸課題(生体適合性,電源確保,無線計測)を解決 するための新技術を提供するものであり,次世代 IoMT デバイスの開発に寄与する研究で あると言える.

第 1 章では、バイオデバイス開発の意義とその課題を明示した後で、コンタクレンズ型デバイスに関する世界の研究動向をまとめ、本研究の目的と構成を示した。

第2章では、コンタクレンズ上に搭載可能な給電素子の設計と市販のコンタクトレンズ上への実装を行い、生体付近で駆動するバイオデバイスへの無線給電に取り組んだ。本章では、まずワイヤレス給電システムの方式や生体への電磁波影響について概説し、本研究で作製するシステムのデザインや周波数帯域を決定した。次に、磁界共鳴結合系を用いた高効率なワイヤレス給電システムについて、理論計算と実験値を用いた解析を行った。具体的には、高周波回路の電子素子パラメータや共振器間の位置関係によって、電力伝送効率が変化することを示した。また、眼球回転運動に即した電力伝送効率の安定性検証や発光ダイオード(LED)の輝度変化を利用した実証試験を行い、眼球回転角が15度以上に達した際、電力伝送効率が著しく低下することを明らかにした。最後に、作成した給電素子とコンタクレンズという異種材料の統合に関して、電解重合法を用いた電着法を提案した。また、実際に作製したコンタクレンズ型デバイスの周波数特性や変形試験を実施することで、本電着法の有効性を検証した。

第 3 章では、卑金属を用いた共振器型アンテナを作製し、金属空気電池のアノード極と して併用することで、涙液環境下で駆動するハイブリッド電源を開発した。これは、ワイヤ レス給電システムと金属空気電池を組み合わせた世界初のウェアラブル電源であり、眼球 表面で高い電力供給性能を示す. 第 2 章で作製した 1 巻きの無線給電用コイルは,溶液の影響を受けないという利点がある一方,その電力伝送効率が僅か 10 %であった. 従って,コンタクレンズ側で高電圧が要求された場合,送電側コイルに印加する電力を増大させる必要があった.このことは,生体組織への高周波磁界暴露に繋がるため,安全性に課題を有していた.そこで,本研究では涙液環境下で駆動するハイブリッド型電源を開発した.その性能は,従来のワイヤレス給電システム単体と比較して磁界強度を 4.3 分の 1 に,消費電力を 18.6 分の 1 に抑制可能である.本章では、卑金属を用いた共振器型アンテナや金属空気電池について発電性能を分析した上で、ハイブリッド電源を構築し、性能評価を行った.

第4章では、第2章で作製した無線給電素子を基盤としたバイオセンサを開発し、体液に含まれる生化学物質の無線計測に取り組んだ。本研究で考案したパッシブ型バイオセンサは、これまでに研究開発が進む NFC (Near Field Communication) や ASIC (Application Specific Integrated Circuit) タイプのバイオセンサと比較して、集積回路を必要としないシンプルな構造により実装可能となる。よって、バイオセンサの単価を抑えることができるという優位性を持つ。本章では、まずバイオセンサと無線情報伝送方式について概説し、最終的に実装するデバイスの通信規格や特性についてまとめた。その後、第2章で作製した LCR 共振器と酵素センサを組み合わせたパッシブ型バイオセンサを提案した。具体的には、簡易的な2極式電気化学測定器を実装し、LCR (L:インダクタンス、C:キャバシタンス、R:レジスタンス)共振器の可変抵抗成分として組み込むことで、生化学情報の濃度変化に起因した共振器型アンテナの負荷変調を実証した。その結果、電気化学測定部をそのまま化学抵抗器として利用し、溶液中の基質濃度を、共振周波数における振幅変化として無線計測可能であることを示した。さらに、化学抵抗器の触媒酵素(GOD:グルコースオキシダーゼ、LOD:ラクテートオキシダーゼ)を変えることで、涙中グルコース濃度と血中ラクテート濃度の選択的計測に成功し、提案したパッシブ型バイオセンサの汎用性を示した。

第5章では、第4章で作製したパッシブ型バイオセンサの感度を向上させるため、新しい原理の無線計測システムを提案した。一般的に、体液中の生化学物質は微量であり、従来までの無線計測システムでは、センサ感度が非常に低いという問題が残されていた。そこで、本研究では量子力学的効果が得られる PT 対称性を磁界共鳴結合系に導入し、Q 値を大幅に改善することでセンサ感度の向上を図った。本章では、従来の磁界共振結合系(ロス-ロス結合)に対して、PT 対称性を満たす磁界共振結合系(ゲイン-ロス結合)において、Q 値が約125倍向上することを確認している。この Q 値の向上は、従来型のエネルギーを消費する散逸系では達成不可能であり、PT 対称性を導入した保存系においてのみ観測される現象である。次に、この PT 対称性を有する共振結合系と第4章で作製したパッシブ型バイオセンサを組み合わせた生化学情報の無線計測に取り組んだ。その結果、振幅変調度、即ちセンサ感度の大幅な向上と調整が可能であることが明らかとなった。また、共振器間に生体組織を挿入した場合においても、PT 対称性を満たす無線計測が可能であることを実証したことで、体内埋め込み型デバイスとしての実用可能性を示した。

第6章では、各章のまとめを含めた総括を行った.

付録A高周波回路の取り扱い

高周波回路の概念について触れ、本研究における一連の開発工程に必要となる基礎知識を体系的に説明する. 低周波の電流・電圧を扱う電気回路では、伝送線路の長さに対して信号の波長が十分に長いため、信号線の両端における位相差を考慮する必要はない. 厳密には、微弱な信号の位相ずれが発生しているがこれは近似できる範囲であるため、特に複雑な回路設計を施す必要がないのである. 一方で、高周波回路の設計においては、伝送線路の長さと信号の波長が同程度のサイズであるため、信号線の位置によっては位相や振幅ずれが生じてしまう. また、このような高周波回路では一般的な電流計や電圧計を使用することが出来ない. これは、回路にプローブを接触させただけで、そのプローブ分の長さが新たな伝送線路として機能してしまうからである. 従って. 高周波回路における測定には電力が用いられ、測定物に対してどの程度電力を供給でき、どの程度が反射されているかを分析する. このような測定を行う場合には、Sパラメータという指標とネットワークアナライザと呼ばれる計測機器が使用される.

A.1 S パラメータ

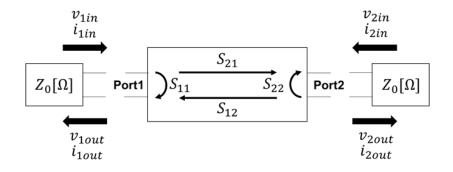


Figure A.1 Schematic illustration of S parameters.

Sパラメータ(Scattering Parameter)とは、高周波回路に入力された電力と出力された電力(正確にはその平方根をとったもの)の関係を行列によって表現したものである。即ち、その次元は電圧であることに注意する。Figure A.1 に 2 端子対回路を示す。ポート 1 から入り込む進行波の電圧・電流をを v_{1in} 、 i_{1in} とおき、後退波をそれぞれ v_{1out} 、 i_{1out} とすると、回路に流入する電圧・電流の総和は式(A.1)のように表現することが出来る。

$$\begin{cases} v_1 = v_{1in} + v_{1out} \\ i_1 = i_{1in} + i_{1out} \end{cases}$$
 (A.1)

ここで、入力波 a_1 と出力波 b_1 は以下のように表すことが出来る式 (A.2).

$$\begin{cases} a_1 = \frac{v_{1in}}{\sqrt{Z_0}} = i_{1in}\sqrt{Z_0} \\ b_1 = \frac{v_{1out}}{\sqrt{Z_0}} = i_{1out}\sqrt{Z_0} \end{cases}$$
(A.2)

さらに、S 行列の個々の要素は式(A.3)のように表現することができる。 S_{11} はポート 1 から 測定対象を見たときの入力反射係数を、 S_{22} はポート 2 から測定対象を見たときの出力反射係数を表す。一方で、 S_{21} はポート 1 からの入射電力に対するポート 2 で得られる出力電力の関係を表しており順方向伝達係数と呼ばれる。 S_{12} は逆に、ポート 2 からポート 1 へ伝送される電力比であるため逆方向伝達係数と呼ばれる。例えば、計測対象の入力インピーダンスが $Z_0\Omega$ であった場合、ポート 1 までの伝送線路と測定対象とのマッチングが完璧にとれているので、入射電力は全て吸収されることとなり入力反射係数 S_{11} の値は 0 となる $(|b_1|^2/|a_1|^2=1)$.

$$\begin{cases} S_{11} = b_1/a_1 & (a_2 = 0) \\ S_{21} = b_2/a_1 & (a_2 = 0) \\ S_{12} = b_1/a_2 & (a_1 = 0) \\ S_{22} = b_2/a_2 & (a_1 = 0) \end{cases}$$
(A.3)

また、もし対象とする回路が無損失の場合、S行列はユニタリ行列となり常に以下の関係を示す. 即ち、損失がないので反射波と入射波の合計 100%になるという意味である. これを電力散乱率と呼び、この値が 1 より小さい場合は損失性のある回路である言える.

$$|S_{11}|^2 + |S_{21}|^2 = 1 (A.4)$$

A2 スミスチャート

シングルポートのSパラメータを反射係数 (Γ) と呼び、負荷インピーダンス Z_L や特性インピーダンス Z_0 を用いて以下のような関係式を導くことが出来る $(Figure\ A.2)$.

$$\Gamma = \frac{Z_L - Z_0}{Z_L + Z_0} \tag{A.5}$$

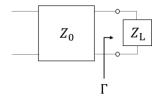


Figure A.2 Schematic image of reflection coefficient Γ .

このような反射係数と負荷インピーダンスの関係を示すのがスミスチャートである (Figure A.3). 周波数に対応したインピーダンス成分を、特殊な複素平面状にプロットすることでインダクタンス成分 (L)、キャパシタンス成分 (C) が変化したときのインピーダンス軌跡を簡単に確認することが出来る. 読み取り方の基本としては、垂直方向をリアクタンス成分、水平方向をレジスタンス成分と捉えれば良い。垂直上方向に点があれば相対的にインダクタンス成分が強いインピーダンスであり、垂直下方向に点があればキャパシタンス成分が強くなっていることが分かる. また、水平方向に関しては、左に行くにつれ抵抗成分が 0 に、右に行くにつれ抵抗成分が ∞ となる. また、中心点はリアクタンス成分が 0 で、レジスタンス成分が 50 Ω であることを示す。高周波回路の設計においては基本的に 50 Ω の系が使用されるため、直感的に特性インピーダンス $Z_0=50$ と捉えて良い(75 Ω の系も存在する). 即ち、スミスチャートで取り扱う反射係数とは接続された被試験対称の負荷が 50 Ω のインピーダンス成分に対してどれだけ離れているかを評価するものである.

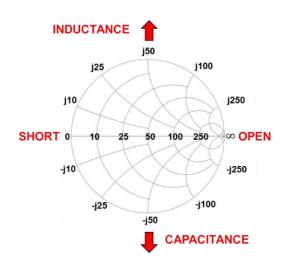


Figure A.3 Smith Chart

A.3 定在波

スミスチャート上におけるインピーダンス整合状態 (Re(Z) = 50) と不整合状態 (OPEN, Re(Z) = ∞) について、定在波の観点から解説する.整合状態とは、被試験対象からの反射がなく、進行波が半無限長線路と同様に伝播する場合を指す.これは、反射端にて進行波に干渉する反射波が発生しないことを意味しており、これらの合成波である定在波は、進行波と同等になる(Figure A.4).これは、いわゆる全透過を表しており、反射係数と定在波比

(VSWR) は以下の通りとなる:
$$\Gamma = \frac{Z_L - Z_0}{Z_L + Z_0} = \frac{50 - 50}{50 + 50} = 0$$
, VSWR $= \frac{1 + |\Gamma|}{1 - |\Gamma|} = \frac{1 + 0}{1 - 0} = 1$.

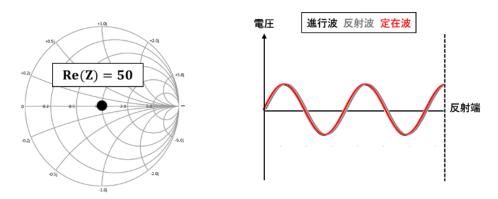


Figure A.4 Schematic illustration of total transmission.

次に,不整合状態とは,被試験対象からの反射波は進行波と等しく同相であり,電流は相殺,電圧は増幅(最大値は進行波電圧の2倍,最小値は0)される場合を指す.これは,反射端にて進行波と同等の波が反射されることを意味しており,これらの合成波である定在波は振動する(Figure A.5).これは,いわゆる全反射を表しており,反射係数と定在波比(VSWR)

は以下の通りとなる:
$$\Gamma=rac{Z_L-Z_0}{Z_L+Z_0}=rac{50-\infty}{50+\infty}pprox 1$$
, $VSWR=rac{1+|\Gamma|}{1-|\Gamma|}=rac{1+1}{1-1}pprox \infty$.

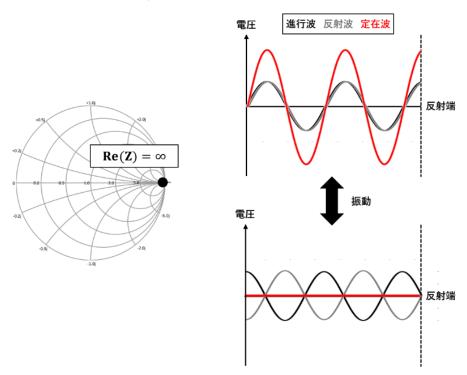


Figure A.5 Schematic illustration of total reflection.

付録 B 磁界共鳴結合系の固有値導出

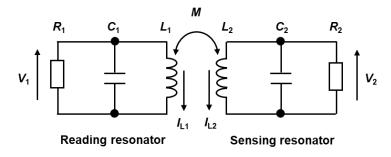


Figure B.1 The circuit diagram of LCR parallel resonant coupling system.

Figure B.1 に示した磁界共鳴結合系の固有値は、2つの並列型 LCR 共振器から成るバランス方程式より導出可能である。ここで、図中に示した電子素子について、 L_n はインダクタンス、 C_n はキャパシタンス、 R_n はレジスタンス、Mは相互インダクタンスを表す。このとき、キルヒホッフの法則より、インダクタンスに流入する電流(I_{Ln})と各電子素子に印加される電圧(V_n)について以下の関係を導出する。

$$\begin{pmatrix} V_1 \\ V_2 \end{pmatrix} = j\omega \begin{pmatrix} L_1 & M \\ M & L_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I_{L1} \\ I_{L2} \end{pmatrix} \tag{B.1}$$

次に、式(B.1)を電流について行列変換する.

$$\binom{I_{L1}}{I_{L2}} = \frac{j\omega}{-\omega^2 L_1 L_2 + \omega^2 M^2} \binom{L_2}{-M} \binom{V_1}{V_2}$$
 (B.2)

このとき、キルヒホッフの電流則にて各LCR共振器を数式化すると以下の通りとなる.

$$\begin{cases} I_{L1} + \frac{V_1}{R_1} + j\omega C_1 V_1 = 0 \\ I_{L2} + \frac{V_2}{R_2} + j\omega C_2 V_2 = 0 \end{cases}$$
 (B.3)

ここで、式 (B.1) を式 (B.2) に代入し、 V_n についてまとめることで、電圧に関するバランス方程式を導くことができる.

$$\begin{pmatrix} j\omega C_1 + \frac{1}{R_1} - \frac{L_2}{j\omega(M^2 - L_1 L_2)} & \frac{M}{j\omega(M^2 - L_1 L_2)} \\ \frac{M}{j\omega(M^2 - L_1 L_2)} & j\omega C_2 + \frac{1}{R_2} - \frac{L_1}{j\omega(M^2 - L_1 L_2)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} V_1 \\ V_2 \end{pmatrix} = 0$$
 (B.4)

このとき、各キャパシタに蓄えられるエネルギー (a_n) を使って、電圧 (V_n) を表現する.

$$V_n = a_n \sqrt{\frac{2}{C_n}} \tag{B.5}$$

また, 各共振器の共振周波数は以下の通りである.

$$\omega_n = \frac{1}{\sqrt{L_n C_n}} \tag{B.6}$$

ここで、PT 対称性を構築する場合、各共振器のゲイン/ロスの割合を考慮する必要がある。 従って、ゲイン/ロスレートを以下のように表現する。

$$\gamma_n = \frac{1}{2R_n C_n} \tag{B.7}$$

ここで、共振器同士の結合係数は以下の通りである.

$$k = \frac{M}{\sqrt{L_1 L_2}} \tag{B.8}$$

次に,式(B.5)(B.6)(B.7)(B.8)を式(B.4)に代入することで以下の2式が導出可能となる.

$$\left\{ \frac{j\omega}{2} \left(-1 + \frac{{\omega_1}^2}{\omega^2 (-k^2 + 1)} \right) - \gamma_1 \right\} a_1 + j \left(-\frac{k\omega_1 \omega_2}{2\omega (-k^2 + 1)} \right) a_2 = 0$$
(B.9)

$$j\left(-\frac{k\omega_1\omega_2}{2\omega(-k^2+1)}\right)a_1 + \left\{\frac{j\omega}{2}\left(-1 + \frac{{\omega_2}^2}{\omega^2(-k^2+1)}\right) - \gamma_2\right\}a_2 = 0$$
 (B.10)

これら 2 式を用いて、共振結合系のエネルギーに関する演算子を行列表現すると、以下の バランス方程式を得る。

$$\begin{pmatrix} \frac{j\omega}{2} \left[\frac{{\omega_1}^2}{\omega^2 (1 - k^2)} - 1 \right] - \gamma_1 & -\frac{jk\omega_1\omega_2}{2\omega (1 - k^2)} \\ -\frac{jk\omega_1\omega_2}{2\omega (1 - k^2)} & \frac{j\omega}{2} \left[\frac{{\omega_2}^2}{\omega^2 (1 - k^2)} - 1 \right] - \gamma_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \end{pmatrix} = 0$$
 (B.11)

ここで、バランス方程のアドミタンス行列式を解くことで、磁界共鳴結合系のシステム固有値を導出することができる。以下は式(B.11)を展開したものである。

$$\omega^{4}\{-(1-k^{2})^{2}\} + \omega^{3}\{j2(1-k^{2})^{2}(\gamma_{1}+\gamma_{2})\}$$

$$+ \omega^{2}\{(\omega_{1}^{2}+\omega_{2}^{2})(1-k^{2}) + 4(1-k^{2})^{2}\gamma_{1}\gamma_{2}\}$$

$$+ \omega\{-j2(\omega_{2}^{2}\gamma_{1}+\omega_{1}^{2}\gamma_{2})(1-k^{2})\} + \{\omega_{1}^{2}\omega_{2}^{2}(k^{2}-1)\} = 0$$
(B.12)

式 (B.12) は 4 次方程式であるため、フェラーリの解法を適用する.ここで、各項の係数を以下のように変数で表現する.

$$\begin{cases}
a = -(1 - k^{2})^{2} \\
b = j2(1 - k^{2})^{2}(\gamma_{1} + \gamma_{2}) \\
c = (\omega_{1}^{2} + \omega_{2}^{2})(1 - k^{2}) + 4(1 - k^{2})^{2}\gamma_{1}\gamma_{2} \\
d = -j2(\omega_{2}^{2}\gamma_{1} + \omega_{1}^{2}\gamma_{2})(1 - k^{2}) \\
e = \omega_{1}^{2}\omega_{2}^{2}(k^{2} - 1)
\end{cases}$$
(B.13)

次に,式(B.13)を式(B.12)に代入する.

$$\omega^4 + \frac{b}{a}\omega^3 + \frac{c}{a}\omega^2 + \frac{d}{a}\omega + \frac{e}{a} = 0$$

$$\omega^4 + A\omega^3 + B\omega^2 + C\omega + D = 0$$
(B.14)

ここで、各項の係数は以下のように定義される.

$$\begin{cases} A = \frac{b}{a} \\ B = \frac{c}{a} \\ C = \frac{d}{a} \\ D = \frac{e}{a} \end{cases}$$
(B.15)

次に、求める固有値を以下のように定義する.

$$\omega = y - \frac{1}{4}A\tag{B.16}$$

その後,式(B.16)を式(B.14)に代入し,3次の項を削除する.

$$y^{4} + \left(-\frac{3}{8}A^{2} + B\right)y^{2} + \left(\frac{1}{8}A^{3} - \frac{1}{2}AB + C\right)y$$

$$+ \left(-\frac{3}{256}A^{4} + \frac{1}{16}A^{2}B - \frac{1}{4}AC + D\right) = 0$$
(B.17)

このとき、各項の係数を以下のように定義する.

$$\begin{cases} p = -\frac{3}{8}A^2 + B \\ q = \frac{1}{8}A^3 - \frac{1}{2}AB + C \\ r = -\frac{3}{256}A^4 + \frac{1}{16}A^2B - \frac{1}{4}AC + D \end{cases}$$
 (B.18)

次に、式 (B.18) を式 (B.17) に代入することで以下の式を得る.

$$y^4 = -py^2 - qy - r (B.19)$$

ここで、両辺に $ty^2 + \frac{t^2}{4}$ を加算することで、完全平方表現を作る.

$$\left(y^2 + \frac{t}{2}\right)^2 = (t - p)y^2 - qy + \left(\frac{t^2}{4} - r\right)$$
(B.20)

このとき、2 次方程式を完全平方に変換するためには、判別式が0 になる必要がある。よって、右辺の判別式に関する定義は以下のようになる。

$$(-q)^{2} - 4(t-p)\left(\frac{t^{2}}{4} - r\right) = 0$$

$$t^{3} - pt^{2} - 4rt + (4pr - q^{2}) = 0$$
(B.21)

ここで、3次方程式である式(B.21)をカルダノの公式により解いていく。そのために、各項の係数を以下のように定義する。

$$\begin{cases} \alpha = -p \\ \beta = -4r \\ \gamma = 4pr - q^2 \end{cases}$$
 (B.22)

次に、式 (B.22) を式 (B.21) に代入する.

$$t^{3} + \alpha t^{2} + \beta t + \gamma = 0 \tag{B.23}$$

ここで、tを以下のように定義する.

$$t = s - \frac{1}{3}\alpha \tag{B.24}$$

これより、式 (B.24) を式 (B.23) に代入することで、2次の項を削除する.

$$s^{3} + \left(\beta - \frac{\alpha^{2}}{3}\right)s + \left(\frac{2\alpha^{3}}{27} - \frac{\alpha\beta}{3} + \gamma\right) = 0$$
(B.25)

ここで、各項の係数を以下のように定義する.

$$\begin{cases} P = \beta - \frac{\alpha^2}{3} \\ Q = \frac{2\alpha^3}{27} - \frac{\alpha\beta}{3} + \gamma \end{cases}$$
 (B.26)

次に,式(B.26)を式(B.25)に代入することで以下の式を得る.

$$s^3 + Ps + Q = 0 (B.27)$$

加えて、sを以下のように定義する.

$$s = u + v \tag{B.28}$$

ここで、式 (B.28) を式 (B.27) に代入することで以下の方程式を得る.

$$u^{3} + v^{3} + Q + (3uv + P) + (u + v) = 0$$
(B.29)

この式 (B.29) より,以下の2式が得られる.

$$u^3 + v^3 + Q = 0 (B.30)$$

$$3uv + P = 0 (B.31)$$

このとき、式 (B.31) より以下の関係式を得ることが出来る.

$$\begin{cases} v = -\frac{P}{3u} \\ u = -\frac{P}{3u} \end{cases}$$
 (B.32)

ここで,式 (B.32) を式 (B.30) に代入することで,以下の方程式を得る.

$$\begin{cases} (u^3)^2 + Qu^3 - \left(\frac{P}{3}\right)^3 = 0\\ (v^3)^2 + Qv^3 - \left(\frac{P}{3}\right)^3 = 0 \end{cases}$$
(B.33)

これら2次方程式(B.33)に解の公式を適用することで、以下の定義式を得る.ここで、各三乗根の定義には、それぞれ異なる符号を付与する.

$$\begin{cases} u = \sqrt[3]{u^3} = \sqrt[3]{-\frac{Q}{2} + \sqrt{\left(\frac{Q}{2}\right)^2 + \left(\frac{P}{3}\right)^3}} \\ v = \sqrt[3]{v^3} = \sqrt[3]{-\frac{Q}{2} - \sqrt{\left(\frac{Q}{2}\right)^2 + \left(\frac{P}{3}\right)^3}} \end{cases}$$
(B.34)

次に,式(B.34)を式(B.28)に代入することで,以下の方程式を得る.

$$s = u + v = \sqrt[3]{-\frac{Q}{2} + \sqrt{\left(\frac{Q}{2}\right)^2 + \left(\frac{P}{3}\right)^3}} + \sqrt[3]{-\frac{Q}{2} - \sqrt{\left(\frac{Q}{2}\right)^2 + \left(\frac{P}{3}\right)^3}}$$
 (B.35)

その後,式(B.35)を式(B.24)に代入する.

$$t = s - \frac{1}{3}\alpha = \sqrt[3]{-\frac{Q}{2} + \sqrt{\left(\frac{Q}{2}\right)^2 + \left(\frac{P}{3}\right)^3}} + \sqrt[3]{-\frac{Q}{2} - \sqrt{\left(\frac{Q}{2}\right)^2 + \left(\frac{P}{3}\right)^3}} - \frac{1}{3}\alpha$$
 (B.36)

ここまでで、tに関する定義を導出した.次に、式(B.20)を以下のように変形する.

$$\left(y^2 + \frac{t}{2}\right)^2 = (t - p)\left(y - \frac{q}{2(t - p)}\right)^2 - \frac{1}{4(t - p)}\left[q^2 - 4(t - p)\left(\frac{t^2}{4} - r\right)\right]$$
(B.37)

ここで、式 (B.21) より判別式=0 が定義されており、従って、式 (B.37) は以下のように表現可能である.

$$\left(y^2 + \frac{t}{2}\right)^2 = \left(\sqrt{t - p} \cdot y - \frac{q}{2\sqrt{t - p}}\right)^2 \tag{B.38}$$

このとき、各項の係数を以下のように定義する.

$$\begin{cases}
m = \sqrt{t - p} \\
n = -\frac{q}{2\sqrt{t - p}}
\end{cases}$$
(B.39)

最後に,式 (B.39) を式 (B.38) に代入することで,以下の方程式を得る.

$$\left(y^2 + my + \frac{t}{2} + n\right)\left(y^2 - my + \frac{t}{2} - n\right) = 0$$
 (B.40)

ここで, 二次方程式の解の公式を用いて, yを算出する.

$$\begin{cases} y_{1,2} = \frac{-m \pm \sqrt{m^2 - 4\left(\frac{t}{2} + n\right)}}{2} \\ y_{3,4} = \frac{m \pm \sqrt{m^2 - 4\left(\frac{t}{2} - n\right)}}{2} \end{cases}$$
(B.41)

ここで得られた式 (B.41) を式 (B.16) に代入することで、最終的なシステムの固有値 (ω) が求まる.

$$\begin{cases} \omega_{1,2} = \frac{-m \pm \sqrt{m^2 - 4\left(\frac{t}{2} + n\right)}}{2} - \frac{A}{4} \\ \omega_{3,4} = \frac{m \pm \sqrt{m^2 - 4\left(\frac{t}{2} - n\right)}}{2} - \frac{A}{4} \end{cases}$$
(B.42)

以上が、磁界共鳴結合系における固有値の導出過程である.

謝辞

本研究は、早稲田大学大学院情報生産システム研究科にて行われたものであり、本研究テーマの設定から論文の作製に至るまで、終始一貫したご指導・ご鞭撻をいただきました三宅 丈雄教授に心から深く感謝申し上げます。

眼科学に関するご助言,ならびに動物実験におけるご指導・ご鞭撻をいただきました山口 大学医学部附属眼科学の木村和博先生,ならびに柳井亮二先生に厚く御礼申し上げます.

実験試料を提供して頂きました岡山大学自然科学研究科の仁科勇太先生,ジャパン・ファインスチール株式会社様に深く感謝いたします.

また,3年間の研究助成を受け賜りました早稲田大学および研究費を受け賜りました旭興産グループに心から感謝を申し上げます.

最後に、北九州での生活を充実したものにしてくれた友人、そして温かく見守ってくださいました家族に心から感謝申し上げます。

2022 年 2 月 2 日 高松 泰輝

研究業績

【学術雑誌】

- <u>Taiki Takamatsu</u>, Yunhan Chen, Toshihiko Yoshimasu, Matsuhiko Nishizawa, Takeo Miyake, "Highly Efficient, Flexible Wireless Powered Circuit Printed on a Moist, Soft Contact Lens", Advanced Materials Technologies, Vol.4(5), 1800671, (2019.5).
- 2. <u>Taiki Takamatsu</u>, Yin Sijie, Fang Shujie, Liu Xiaohan, Takeo Miyake, "Multifunctional High-Power Sources for Smart Contact Lenses", Advanced Functional Materials, Vol.30(29), 1906225, (2019.11).

【解説・総説】

- 1. <u>高松泰輝</u>, 三宅丈雄, "ウェアラブル IoT 機器におけるハイブリッド電源", 電気化学, 88 巻 4 号, p.331-336, (2020 年 12 月).
- 2. 三宅丈雄, <u>高松泰輝</u>, "酵素修飾繊維を用いた医療用計測レンズの開発", BIO INDUSTRY, 38 巻 5 号, p.49-56, (2021 年 5 月).

【特許】

1. 三宅丈雄, 高松泰輝, "センサシステム", 特願 2021-047975, (2021 年 3 月 22 日 出願).

【受賞歴】

- 1. JSRMR2021 審査員賞, 第3回日本再生医療とリハビリテーション学会学術大会, (2021年11月6日).
- 2. Young Researchers Poster Award, The 4th International Symposium on Biomedical Engineering, (2019年11月14日).
- 3. Student Poster Award, 10th International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics, (2019年6月27日).
- 4. 若手優秀講演フェロー賞,機械学会,(2019年6月6日).
- 5. Student Award, The second international workshop by the 174th committee JSPS on symbiosis of biology and nanodevices, (2019 年 1 月 29 日).

【査読のある国際・国内会議】

1. <u>Taiki takamatsu</u>, Yin Sijie, Te Xia, Lunjie Hu, Yang Cui, Takeo Miyake, "Highly sensitive passive glucose sensor based on parity-time (PT) symmetric resonators", 34th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, 2 pages, Japan, (2021 年 10 月 26-29 日).

- 2. <u>Taiki Takamatsu</u>, Yin Shijie, Te Xiao, Lunjie Hu, Qi Zhang, Takeo Miyake, "Parity-Time(PT) symmetrically resonant coupling system for wearable biosensors", FSE 若手2nd Event, Online, (2021 年 6 月 15-16 日).
- 3. <u>Taiki Takamatsu</u>, Lu Chen, Takeo Miyake, "A wireless powered smart contact lens for bioapplications", 31st International Microprocesses and Nanotechnology Conference, Japan, (2018 年 11 月 13-16 日).

【査読のない国際・国内会議】

- 1. (国内)(口頭), <u>高松泰輝</u>, 三宅丈雄, "超高感度・超高利得なウェアラブル生体計測システムの開発", 第 3 回日本再生医療とリハビリテーション学会学術大会, Online, (2021年 11月6日).
- 2. (国内)(口頭), <u>高松泰輝</u>, 殷思杰, 肖特, 胡伦杰, 崔洋, 张琪, 三宅丈雄, "PT 対称性共振結合回路を用いた超高感度な生体モニタリングシステムの開発", 第 82 回応用物理学会秋季学術講演会, Online, (2021 年 9 月 10 日).
- 3. (国内)(口頭), Te Xiao, Qi Zhang, <u>Taiki Takamatsu</u>, Lunjie Hu, Takeo Miyake, "Wireless, stretchable contact lens sensors for intraocular pressure monitoring", JSAP Autumn Meeting 2021, Online, (2021 年 9 月 12 日).
- 4. (国内)(口頭), Lunjie Hu, <u>Taiki Takamatsu</u>, Lu Chen, Te Xiao, Takeo Miyake, "Wireless, electrochromic soft contact lenses using PEDOT:PSS composite film", JSAP Autumn Meeting 2021, Online, (2021 年 9 月 12 日).
- 5. Qi Zhang, Te Xiao, <u>Taiki Takamatsu</u>, Lunjie Hu, Takeo Miyake, "Wireless, stretchable contact lens sensors for intraocular pressure monitoring", 第 68 回応用物理学会春季学 術講演会, Japan, (2021 年 3 月 16-19 日).
- 6. <u>Taiki Takamatsu</u>, Takeo Miyake, "Wearable hybrid power sources in tear for contact lens devices", FSE 若手 1st Event, Online, (2020 年 12 月 13 日).
- 7. <u>高松泰輝</u>, 肖特, 胡伦杰, 澍杰方, 熊本浩希, 三宅丈雄, "コンタクトレンズに搭載可能な無線給電型空気亜鉛電源の開発", 第 67 回応用物理学会春季学術講演会, Online, (2020 年 9 月 11 日).
- 8. <u>高松泰輝</u>, 肖特, 胡伦杰, 澍杰方, 熊本浩希, 三宅丈雄, "涙液で駆動するワイヤレス給電型空気亜鉛ハイブリッド電源の開発", 第 67 回応用物理学会春季学術講演会, Canceled because of COVID-19 (2020 年 3 月 12-15 日).
- 9. <u>Taiki Takamatsu</u>, Te Xiao, Lunjie Hu, Fang Shujie, Takeo Miyake, "A wireless powered smart soft contact lens for bioapplications", 2019 MRS Fall Meeting & Exhibit, U.S.A., (2019 年 12 月 1-6 日).
- 10. <u>Taiki Takamatsu</u>, Te Xiao, Lunjie Hu, Fang Shujie, Takeo Miyake, "Wireless, wearable power source printed on moist, soft contact lenses", 第 4 回生体医歯工学共同研究拠点 国際シンポジウム, Japan, (2019 年 11 月 14 日).

- 11. Te Xiao, <u>Taiki Takamatsu</u>, Lunjie Hu, Lu Chen, Takeo Miyake, "A stretchable wireless-powered resonator on soft contact lens", JSAP Autumn Meeting 2019, Japan, (2019 年 9 月 18-21 日).
- 12. Lunjie Hu, <u>Taiki Takamatsu</u>, Te Xiao, Lu Chen, Takeo Miyake, "Transparent, micropatterned Au mesh coil for wireless power transfer between eyeglass/contact lens", JSAP Autumn Meeting 2019, Japan, (2019 年 9 月 18-21 日).
- 13. Fang Shujie, <u>Taiki Takamatsu</u>, Te Xiao, Lunjie hu, Takeo Miyake, "A wireless-powered biobooster on soft contact lens", JSAP Autumn Meeting 2019, Japan, (2019 年 9 月 18-21 日).
- 14. <u>Taiki Takamatsu</u>, Lu Chen, Lunjie Hu, Te Xiao, Shujie Fang, Takeo Miyake, "A WIRELESS POWERED SMART SOFT CONTACT LENS FOR BIOAPPLICATIONS", 10th International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics, Japan, (2019年6月27日).
- 15. Lu Chen, <u>Taiki Takamatsu</u>, Lunjie Hu, Te Xiao, Takeo Miyake, "WIRELESS POWERED ELECTROCHROMIC SOFT CONTACT LENSES USING PEDOT:PSS COMPOSITE FILM", The 11th International Symposium on Microchemistry and Microsystems, China, (2019年5月17日).
- 16. <u>Taiki Takamatsu</u>, Lu Chen, Takeo Miyake, "A WIRELESS POWERED SMART SOFT CONTACT LENS FOR BIOAPPLICATIONS", The 2nd International Workshop by the 174th committee JSPS, Japan, (2019 年 1 月 29 日).
- 17. Lu Chen, <u>Taiki Takamatsu</u>, Takeo Miyake, "A WIRELESS POWERED SMART SOFT CONTACT LENS FOR BIOAPPLICATIONS", 第 28 回日本 MRS 年次大会, Japan, (2018 年 12 月 18-20 日).
- 18. Takeo Miyake, <u>Taiki Takamatsu</u>, Chen Lu, "WIRELESS POWERED, BIOSENSING WEARABLE SMART SOFT CONTACT LENS", Nature Conference on Flexible Electronics, China, (2018年10月12-14日).
- 19. Lu Chen, <u>Taiki Takamatsu</u>, Takeo Miyake, "Contact lens built in a wireless power circuits for bioapplications", 12h International collaboration Symposium on Information, Production and Systems, Japan, (2018 年 11 月 14-16 日).
- 20. <u>高松泰輝</u>, 陳璐, 三宅丈雄, "ソフトコンタクトレンズ上に搭載された無線給電型バイオデバイスの開発", 第79回応用物理学会秋季学術講演会, Japan, (2018年9月18-21日).
- 21. <u>高松泰輝</u>, 杜耐珂, 陈云汉, 吉増敏彦, 三宅丈雄, "ソフトコンタクトレンズ上に搭載された無線給電型バイオデバイスの開発", ロボティクス・メカトロニクス講演会 2018, Japan, (2018 年 6 月 2-5 日).
- 22. Yunhan Chen, <u>Taiki Takamatsu</u>, Toshihiko Yoshimasu, Takeo Miyake, "Smart soft contact lens with wireless power transfer system at 13.56MHz", 応用物理学会第 65 回春季大会, Japan, (2018 年 3 月 17-20 日).