以溶膠－凝膠法製作二氧化鋯感測層在電解質-絕緣層-半導體結構對pH及尿素生物感測之研究

學生:邱品樺　　指導教授:柯富祥 博士

國立交通大學

材料科學與工程學系　奈米科技碩士班

摘 要

離子感測場效電晶體(Ion-sensitive Field Effect Transistor, ISFET)是由 Bergveld 在1970 年首先提出，由於它的尺寸小，反應速度快、可承受外部應力，且與現今的 CMOS 製程相容，所以在現在的感測元件開發中具有相當大的潛力。ISFET的主要結構是電解質-絕緣層-半導體(electrolyte-insulator-semiconductor, EIS)，藉由研究EIS電容結構的特性，我們可以了解不同材料的離子感測性質。傳統上，大部份材料都是使用濺鍍和電漿輔助化學氣相沉積製程，需要高真空系統、靶材等昂貴的設備和材料。

於本論文我們提出溶膠-凝膠法在EIS電容結構上，製作二氧化鋯感測層作pH感測特性研究。本實驗可成功利用濃度及旋塗次數控制膜厚，並結合氧電漿和熱退火處理製作出具有高介電係數的二氧化鋯感測層。為了讓製程成本降低且方法簡便，

使用銀網版印刷電極作為EIS電容及Ag/Ag_xO參考電極的基板材料，更具有延伸電極的優點。另外，本實驗同時研究二氧化鋯pH感測器的非理想特性，包含遲滯效應和時漂效應，以對薄膜品質和感測性質有進一步了解。

在酵素生物感測的應用上，我們結合了尿素酶和二氧化鋯pH感測器作尿素檢測的應用。酵素EIS結構的尿素生物感測器可用來量測不同濃度的尿素電位差分析，濃度範圍約在3到40 mM。本研究在製程上的優點是便宜、簡便及低溫，並發展出溶膠–凝膠法製作二氧化鋯感測層在pH量測及尿素生物感測的應用。

The study of sol-gel-derived ZrO_2 sensing film based on electrolyte–insulator–semiconductor for pH detection and urea biosensing

Student: Pin-Hua Chiu Advisor: Dr. Fu-Hsiang Ko

Department of Materials Science and Engineering & Institute of Nanotechnology
National Chiao Tung University

ABSTRACT

ISFET(Ion-sensitive Field Effect Transistor) was first developed by Bergveld in 1970s, and because of its small size, fast response, rigidity and compatibility with standard CMOS process, ISFET is an attractive candidate of modern sensor device. By studying the characteristics of EIS capacitor, we can understand the nature of ion sensitivity to different materials. Traditionally, the majority of sensing membranes are fabricated by sputter and PECVD process, which require high vacuum systems, targets and other expensive equipment and materials.

In this study we propose the ZrO_2 high-κ materials which act as pH sensitive layers of EIS capacitor by the sol-gel processes. This experiment can successfully control the thickness by concentration and the number of spin-coating of solution, and then

combined with oxygen plasma and thermal annealing to produce a high-κ ZrO_2 sensing layer. In order to reduce the cost and simplify the procedure, Ag screen-printed electrode (Ag-SPE, Zensor Inc.) was used as the substrate for extending electrode of EIS capacitor and Ag/Ag_xO reference electrode. In addition, this study will examine the non-ideal phenomena of ZrO_2 EIS capacitor, including hysteresis and drift effects, to study the quality of ZrO_2 film and have a better understanding of sensor properties.

As a demonstration case of EnFET-based biosensing, urea detection was performed by configuring a hybrid structure encompassing the EIS-based pH sensor. The enzymatic EIS-based urea biosensor allowed the potentiometric analysis of urea, at concentrations ranging from 3 to 40mM. The attractive features in this study are low cost, flexible, easy fabrication and low processing temperature, and the present work has provided some fundamental data for the use of ZrO_2 thin film for EIS-based pH detection and the extended application for biosensing.

誌　　謝

首先要感謝我的指導教授柯富祥教授對於我研究過程的指導和幫助，在這兩年的學習生涯中，讓我學習到研究的態度及方法，也了解到充實自我學問的重要性。老師無時無刻充滿精神活力以及對研究認真嚴謹的態度，使我體會到作研究應有的責任感和追根究柢的精神。

還有感謝游信強老師在我研究上的幫助，帶領我入門對溶膠-凝膠法的研究。感謝潘同明老師在我初步研究ISFET時答覆了我的問題和提供建議，研讀潘同明老師的研究成果更讓我獲益良多。此外，感謝李政哲博士對於製作尿素生物感測器所提出的建議和解答，讓我對酵素偵測和研究流程有進一步的了解。

其次我要感謝朱銘清學長，在我碩士兩年過程中給予許多的幫助和照顧，不論是在實驗或人生經驗上。吳其昌學長對於半導體電性的指導和實驗建議，讓我十分感激，吳佳典學長及吳中書學長在會議時給予的建議，讓我受益匪淺。感謝邱誠樸學長與許耀文學長在曝光機台考核及實驗上的幫忙，還有奈米元件實驗室的劉汶德工程師及簡秀芳小姐，有了你們的協助讓我可以順利完成碩士論文。也感謝實驗室裡一起研究的夥伴們，丁香、崇志、易成與懷箴，你們親切的關心和勉勵，總讓我十分感動，還有京璋學長適時的熱心幫助，貼心的韋伶學妹常為我加油打氣，認識你們真好。

感謝男友對我的關心和督促，和我分享經驗和許多待人處事的道理。最後要感謝我的父母，在我的求學生涯給予無限的支持和照顧，讓我覺得相當幸福及幸運，父母、姊姊和弟弟總是傾聽我的心事，給我適時的溫暖和鼓勵，家庭是我最大的精神支柱和避風港。

誌于 2010.08

邱品樺

Contents

Figure captions

Table captions