

目 錄

| | | |
|-------|---|-----|
| 中文摘要 | | i |
| 英文摘要 | | ii |
| 致謝 | | iii |
| 目錄 | | v |
| 表目錄 | | ix |
| 圖目錄 | | x |
| 一 | 緒論 | 1 |
| 1.1 | 前言 | 1 |
| 1.2 | 研究背景與目的 | 3 |
| 1.3 | 文獻回顧 | 8 |
| 1.3.1 | 生物感測器 | 9 |
| 1.3.2 | 壓電晶體生物感測器 (Piezoelectric crystal biosensor) | 12 |
| 1.3.3 | 壓電陶瓷薄膜 | 14 |
| 1.4 | 研究方法與架構 | 16 |
| 二 | 理論 | 18 |

| | | |
|-------|---|----|
| 2.1 | 壓電材料 | 18 |
| 2.1.1 | 壓電現象之由來 | 18 |
| 2.1.2 | 壓電方程式 | 21 |
| 2.1.3 | QCM 原理 | 25 |
| 2.1.4 | 銻鈦酸鉛 (lead zirconate titanate, PZT) | 27 |
| 2.1.4 | 現行 PZT 製程 | 33 |
| 2.2 | 溶膠-凝膠法 | 36 |
| 2.2.1 | 溶膠-凝膠法(Sol-gel)之理論..... | 39 |
| 2.2.2 | 溶膠-凝膠法(Sol-gel)之特點..... | 42 |
| 2.2.3 | 起始溶液的調配 | 43 |
| 2.2.4 | 薄膜製作 | 44 |
| 2.2.5 | 低溫焦化處理 | 45 |
| 2.2.6 | 高溫結晶熱處理 | 46 |
| 2.3 | 生物檢測流程 | 46 |
| 三 | 實驗 | 50 |
| 3.1 | 感測薄膜的製作 | 50 |
| 3.1.1 | 薄膜披覆 | 51 |
| 3.1.2 | 熱處理過程 | 52 |

| | | |
|---------|---|----|
| 3.1.3 | 薄膜性質分析 | 53 |
| 3.1.3.1 | 傅立葉轉換紅外線光譜儀 (Fourier Transform Infrared spectrometry, FTIR) 分析 | 53 |
| 3.1.3.2 | X 光繞射 (X-Ray Diffraction, XRD) 分析..... | 56 |
| 3.1.3.3 | 掃描式電子顯微鏡 (Scanning Electron Microscopy, SEM) 分析 | 59 |
| 3.1.3.4 | 掃描探針顯微鏡 (Atomic Force Microscopy, AFM) 分析 | 62 |
| 3.2 | 感測元件的製作 | 64 |
| 3.2.1 | 實驗儀器 | 65 |
| 3.2.1.1 | 雙電子槍蒸鍍 (Electron-beam evaporation) | 65 |
| 3.2.1.2 | 熱蒸鍍 (Thermal Evaporation) | 66 |
| 3.2.1.3 | 剝離成形 (Lift-off patterning) | 66 |
| 3.2.2 | 元件製作流程 | 68 |
| 3.2.3 | 元件電路分析 | 75 |
| 3.3 | 生物感測元件的製作 | 77 |
| 3.3.2 | BSA 濃度偵測極限測試 | 77 |
| 3.3.2 | 液相 DNA 專一性感測測試..... | 78 |

| | | |
|-------|---|-----|
| 四 | 結果與討論 | 85 |
| 4.1 | 感測薄膜性質分析 | 85 |
| 4.1.1 | 傅立葉轉換紅外線光譜儀 (Fourier Transform Infrared spectrometry, FTIR) 分析 | 85 |
| 4.1.2 | X 光繞射 (X-Ray Diffraction, XRD) 分析..... | 86 |
| 4.1.3 | 掃描式電子顯微鏡 (Scanning Electron Microscopy, SEM) 分析 | 87 |
| 4.1.4 | 掃描探針顯微鏡 (Atomic Force Microscopy, AFM) 分析..... | 90 |
| 4.2 | 感測元件製程分析 | 90 |
| 4.2.1 | 剝離成形 (Lift-off patterning) | 90 |
| 4.3 | 生物感測分析 | 92 |
| 4.3.1 | BSA 濃度偵測極限測試 | 93 |
| 4.3.2 | 液相 DNA 專一性感測測試..... | 94 |
| 4.4 | 生物感測薄膜分析 | 101 |
| 五 | 結論 | 108 |
| 參考文獻 | | 112 |

表 目 錄

| | | |
|-------|-----------------------------|-----|
| 表 1.1 | 不需要使用標定雜交分析之相關研究比較····· | 110 |
| 表 1.2 | 依轉換器之不同對生物感測器的分類····· | 11 |
| 表 3.1 | FTIR 光譜範圍····· | 54 |
| 表 3.2 | JCPDS 表····· | 58 |
| 表 4.1 | 不同濃度之 BSA 溶液的共振頻率下降值比較····· | 100 |



圖目錄

| | | |
|-------|---|----|
| 圖 1.1 | 生物感測器之結構及其反應過程示意圖 | 12 |
| 圖 1.2 | 各種生物感測器偵測範圍之比較 | 13 |
| 圖 2.1 | 壓電材料單位晶格示意圖 | 20 |
| 圖 2.2 | 石英晶體的切割方式 | 25 |
| 圖 2.3 | ABO ₃ 鈣鈦礦之結晶構造..... | 28 |
| 圖 2.4 | Ti ⁴⁺ 沿C軸之位能變化..... | 29 |
| 圖 2.5 | PbZrO ₃ -PbTiO ₃ 相圖 | 30 |
| 圖 2.6 | PZT 晶格常數對成份的變化..... | 31 |
| 圖 2.7 | 膠體粒子之總位能為吸引位能與排斥位能之和 | 41 |
| 圖 2.8 | 流體注入分析法 | 49 |
| 圖 2.9 | 注流式分析系統簡圖 | 49 |
| 圖 3.1 | PZT 薄膜熱處理 FTIR 圖..... | 55 |
| 圖 3.2 | 布拉格繞射圖 | 56 |
| 圖 3.3 | PZT 不同熱處理溫度之 X 光繞射圖 | 59 |
| 圖 3.4 | PZT top-view 之 SEM 圖..... | 61 |
| 圖 3.5 | PZT cross-section 之 SEM 圖 | 61 |

| | | |
|--------|---------------------------------------|----|
| 圖 3.6 | PZT 熱處理 350°C 之 AFM 圖 | 63 |
| 圖 3.7 | lift - off 流程圖 | 68 |
| 圖 3.8 | 元件製作流程圖 | 73 |
| 圖 3.9 | PZT 微感測器 OM 圖..... | 74 |
| 圖 3.10 | PZT 微感測器示意圖與實體圖..... | 74 |
| 圖 3.11 | 震盪電路電路圖 | 75 |
| 圖 3.12 | PZT 微感測器安裝至震盪電路上進行震盪測試..... | 76 |
| 圖 3.13 | 固相穩定性測試圖 | 76 |
| 圖 3.14 | 本實驗液相裝置示意圖 | 80 |
| 圖 3.15 | 液相穩定性測試圖 | 81 |
| 圖 3.16 | 戊二醛固定法示意圖 | 83 |
| 圖 4.1 | PZT 熱處理前後 SEM 圖 | 87 |
| 圖 4.2 | 熱處理前後的鉑電極 AFM 圖..... | 89 |
| 圖 4.3 | lift-off 失敗的微感測器之表面形貌 SEM 圖..... | 91 |
| 圖 4.4 | 檢測純水之頻率變化情形 | 93 |
| 圖 4.5 | 檢測 10^{-3} (mg/ml) BSA 之頻率變化情形..... | 94 |
| 圖 4.6 | 檢測 10^{-4} (mg/ml) BSA 之頻率變化情形..... | 94 |
| 圖 4.7 | 檢測 10^{-5} (mg/ml) BSA 之頻率變化情形..... | 95 |

| | | |
|--------|---|-----|
| 圖 4.8 | 檢測 10^{-6} (mg/ml) BSA之頻率變化情形..... | 95 |
| 圖 4.9 | 檢測 10^{-7} (mg/ml) BSA之頻率變化情形..... | 96 |
| 圖 4.10 | 檢測 10^{-8} (mg/ml) BSA之頻率變化情形..... | 96 |
| 圖 4.11 | 檢測 10^{-9} (mg/ml) BSA之頻率變化情形..... | 97 |
| 圖 4.12 | 檢測 10^{-10} (mg/ml) BSA之頻率變化情形..... | 97 |
| 圖 4.13 | 檢測 10^{-11} (mg/ml) BSA之頻率變化情形..... | 98 |
| 圖 4.14 | 檢測 10^{-12} (mg/ml) BSA之頻率變化情形..... | 98 |
| 圖 4.15 | BSA 濃度與之頻率位移變化情形 | 101 |
| 圖 4.16 | 檢測 10^{-3} (mg/ml) BSA之專一性頻率變化情形..... | 102 |
| 圖 4.17 | 檢測 1 mg/ml DNA 之專一性頻率變化情形..... | 103 |
| 圖 4.18 | 檢測經過 Plmsa 處理後 1 mg/ml DNA 之專一性頻率變化 情形 | 104 |
| 圖 4.19 | 未施加 BSA 前之表面形貌 AFM 圖..... | 105 |
| 圖 4.20 | 施加 BSA 後之表面形貌 AFM 圖..... | 106 |
| 圖 4.21 | 施加 BSA 前後之表面形貌 SEM 圖..... | 107 |