

CURRENT TOPICS (4)

FET センサ

松 尾 正 之

東北大学工学部電子工学科 〒980 仙台市荒巻字青葉

(1984年4月2日 受理)

FET Sensors

Tadayuki MATSUO

Department of Electronic Engineering Faculty of Engineering
Tohoku University Sendai 980

(Received April 2, 1984)

An FET sensor is an integrated device of the insulated gate field effect transistor (IGFET) and the chemical sensor and therefore is named as chemically sensitive field effect transistor (CHEMFET). In the CHEMFET, the gate metal is replaced a more complex structure having chemically sensitive layer. CHEMFETs are new type of chemical sensors and have potential advantages over conventional chemical sensors in miniaturization, robust solid state nature, mass productivity etc.

According to the nature of the interaction between the species to be detected and the chemically sensitive layer, CHEMFETs can be divided into two groups: one that will measure gas concentrations, for example Pd gate FET (H_2 gas sensor) and the other that will measure ion concentrations in the solution. The latter called an ion sensitive FET (ISFET).

This paper describes the present status of ISFET, that is, its historical survey, principle, fabrication method and ion selectivities.

1. はじめに

一般にセンサとは“外界の何らかの物理量あるいは化学量をとらえて、電気信号に変換して検知するデバイスと考えられており、その変換機構に多様な物理化学現象を用いたセンサが実用されている。センサは被検知量を電圧（電流）または電気インピーダンスなどの変化に変換するもので、検出器である電子的測定器とは独立しているのが普通である。しかしトランジスタの一種である絶縁ゲート形電界効果トランジスタ (insulated gate field effect transistor, IGFET*) の構造を用いると、界面電気現象を利用したセンサと検出器であるトランジスタ増幅器とを薄い絶縁膜を介して直接結合でき、新しいタイプの集積化センサが実現できる。これらのうち

特にイオン選択性電極やガスセンサなどの化学センサと一体化したものが盛んに研究されており、CHEMFET (chemically sensitive FET) と呼ばれている。本稿ではこの化学的 FET センサについて紹介したい。

2. 歴史的経緯

1970年 Bergveld が IGFET のゲート金属電極をとりさり、2000 Å 厚の SiO_2 膜のゲートを直接 pH 4.6 の NaCl 溶液に浸し、 Na^+ 濃度によってトランジスタのドレイン電流が変わることを見出した¹⁾。ついでこのデバイスは Na^+ のみならず H^+ 濃度にも応答することを報告している²⁾。Bergveld はこのデバイスは電解液中に比較電極を用いなくとも、液中の特定イオンによって発生する SiO_2 -電解液の界面電位が測定できると主張したが、後にこの説は否定された。また SiO_2 膜は液中では水和し、膜の絶縁性が劣化しデバイスの電氣的な動作が不安定であった。

1971年筆者らは Bergveld と同様なデバイスを用い、

* IGFET は当初絶縁物として酸化物 SiO_2 を用いていたため、MOSFET (metal-oxide-semiconductor FET) といわれていた。現在は一般化して IGFET または、MISFET という。

生体の活動電位を誘導する能動電極としての基礎実験を行ない、その動作を確認した³⁾。その後ゲート絶縁膜に水和しない SiN_4 膜を用いたデバイスを試作し、これが能動電極として動作するとともに非常に安定な pH センサであること、ならびに Na^+ , K^+ に殆んど感じないことを見出した^{4), 6)}。Bergveld の実験と異なる点は、水和しない絶縁膜を用いたこと、および比較電極を用いて電解液の電位を固定した点であり、Bergveld と筆者はこの点互いに討論した。

ついで 1975 年 Janata らは筆者らと同じ Si_3N_4 膜を用いたデバイスを用い、pH センサとしての動作を確認めるとともに、そのゲートを PVC 中にバリノマイシンを入れた膜で被覆することによって K^+ センサとなることを明らかにした⁵⁾。と同時にこれを安定に動作させるためには比較電極が必要であると結論している。

一方 1975 年 Lundström は IGFET のゲート金属として Pd を用いた Pd- SiO_2 -Si 構造をもつデバイスを試作し、これが H_2 や H_2S ガスに応答することを見出している⁷⁾。またこのころ Zemel はこのような化学的半導体デバイス (chemically sensitive semiconductor device, CSSD) の初めての解説を行なった⁸⁾。以来多くの研究が世界の各地で行われて現在に至っているが、1977 年米国 Cleveland の Case Western Reserve 大学で開催された CSSD に関するワークショップはその後のこの分野の発展に非常に大きく貢献した⁹⁾。なお CHEMFET の全般に関しては Janata らの優れた解説がある¹⁰⁾。

3. 原 理

A) 半導体の電界効果

薄く不純物を拡散させた p 形または n 形半導体 (S) 基板の表面に数千 Å ほどの SiO_2 など絶縁物 (I) と Al などの金属 (M) の薄層を形成したものを MIS 構造といい、現在の集積回路 (IC) の基本的な一つの構造である。MIS 構造においては金属と半導体の間に電圧を印加することによって絶縁物と半導体の界面における表面電荷を制御することができる。すなわち絶縁物を介しての電界効果によって SiO_2 -Si の界面のキャリア (正孔または自由電子) を制御し、a) 多数キャリアの過剰な蓄積、b) 多数キャリアのない空乏層、c) 基板の多数キャリアと反対の極性のキャリアの誘起 (表面反転層)、の三つの状態を作り出すことができる。空乏層は電界の強さによってその拡がり具合が変化するので、この範囲では MIS 構造は電圧制御形可変コンデンサとなる。また反転層を生ずる電圧を閾値電圧 (V_T) といい、反転層が生じた状態では電界によって反転層内のキャリア濃度が制御できる。したがって半導体表面に接近して基板と反対の極性の

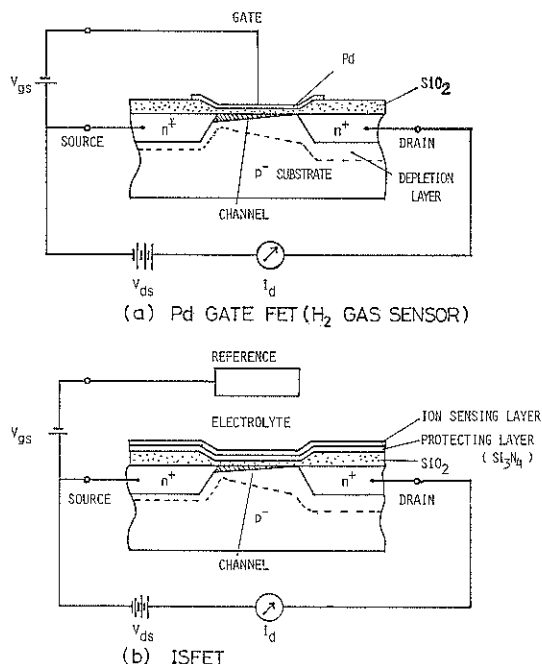


Fig. 1 Principle of FET sensor

不純物層の電極を形成し、これをドレイン (D)、ソース (S) 電極とすれば、表面の反転層を通路 (チャネル) として D-S 間に電流を流すことができ、しかもその電流を金属 (ゲート電極) と基板の電圧によって制御できる。これが IGFET の原理である。

以上の説明で明らかのように、MIS 構造を用いたデバイスの最大の特長は絶縁物を介して電位を検出するため、入力抵抗が極めて高い理想的なポテンショメトリックな検出器となる点である。またデバイスとしては可変容量形と電界効果トランジスタの二種類がある。

B) 電界効果を用いた化学センサ

化学センサはイオン選択性電極 (ion selective electrode, ISE) のように測定量を界面電位として検出するものが多い。普通界面電位の検出にはセンサ自体の導電性が必要条件となるが、この界面電位を発生する化学センサを MIS 構造の半導体デバイスと集積化するとセンサの導電性は必ずしも必要とならない。両者を集積化することとは、MIS 構造のデバイスの金属電極をとりさり、代りにイオン感応膜やガス感応膜をゲートに直接接合することである。

Fig. 1 に IGFET と化学センサを集積化した FET センサの原理図を示す。勿論、容量形センサの構成も可能であるが、FET 形と本質的な相異はないのでここでは省略する。

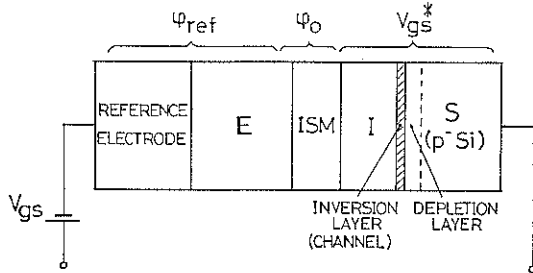


Fig. 2 Block diagram showing basic structure of ISFET (E: electrolyte, ISM: ion sensing membrane, I: insulator membrane, S: semiconductor)

同図 a) は H_2 ガス感応膜の Pd 薄膜をゲート電極とした H_2 ガスセンサである。これは Pd 膜の表面で H_2 ガスが解離し水素原子となり Pd 中を拡散し、Pd-SiO₂ 界面に吸着され、Pd の仕事関数を変化させることを利用している。同図 b) は ISFET の原理図で、これはゲートにイオン感応膜を用い、液中の特定イオンによりこの膜の界面に生ずる電位によってチャネル電流が変化することを利用している。両者の相異は界面電位発生機構のみにあって、その半導体側への作用は全く同様である。したがって以下 ISFET についてのみ解説する。

Fig. 2 は ISFET の基本的構造を示すブロック図である。すなわちこのデバイスは電解液 (E) — イオン感応膜 (ISM) — 絶縁物 (I) — 半導体 (S) 構造のデバイスであるので、MIS 構造より複雑である。しかし絶縁物 — 半導体の界面現象はすでに説明されているので、電解液 — イオン感応膜 — 絶縁物、または電解液 — 絶縁物の界面現象が ISFET の動作機構の解明の最大の問題点である。またこの点の構造を工夫することによっていろいろなタイプの ISFET を作ることができる。ただし電解液 — イオン感応膜の界面現象に関しては従来蓄積されてきた ISE の知識が殆んどそのまま利用できると考えてよい。

C) ISFET の特性

ISFET の電圧電流特性例は Fig. 3 のようになる。すなわちドレイン電流 I_d はドレイン・ソース間電圧 V_{ds} が低い間は V_{ds} に依存して (非飽和領域) 流れ、また V_{ds} が高くなるとドレイン側の空乏層の拡りが大きくなり、 I_d は V_{ds} に無関係に流れる (飽和領域)。この特性は普通の IGFET と同様に考えることができ、次式で表わすことができる。

非飽和領域:

$$I_d = C[(V_{gs}^* - V_T)V_{ds} - V_{ds}^2/2] \quad (1)$$

飽和領域:

$$I_d = C(V_{gs}^* - V_T)^2/2 \quad (2)$$

ただし

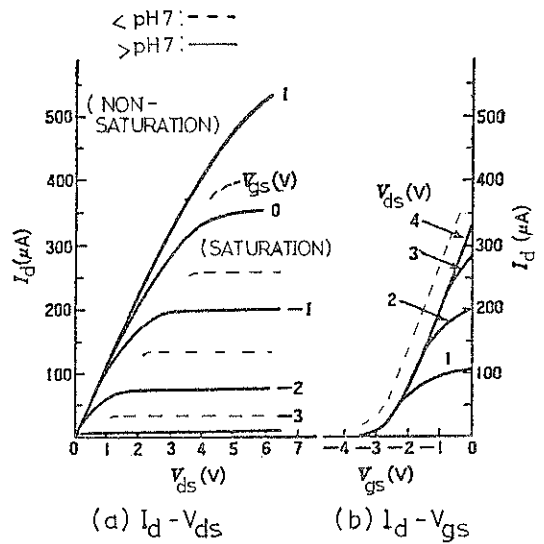


Fig. 3 An example of I_d - V_{ds} and I_d - V_{gs} characteristics of ISFET

$$V_{gs}^* = V_{gs} + (\phi_0 - \phi_{ref}) \quad (3)$$

ここで V_T : 絶縁物 — 半導体間の閾値電圧

C : ISFET の寸法による定数

V_{gs} : ゲートバイアス電圧

ϕ_{ref} : 比較電極電位

ϕ_0 : イオン感応膜の界面電位

もし ϕ_{ref} が一定であれば、上式は ϕ_0 すなわち液中のイオン活量が一定ならば、 I_d は V_{gs} すなわち液の電位によって変わり、また V_{gs} 一定ならば、 I_d は ϕ_0 によって変わることを示す。

更に絶縁物 — 半導体の界面に固定電荷が存在するから、 V_T の値をいろいろに制御することができる。したがって $V_{gs}=0$ でも I_d が流れるもの (デプレション形)、 $V_{gs}=0$ で I_d が流れないもの (エンハンスメント形)などを製作することができる。これらの詳細は別途 IGFET の専門書を参考にされたい。

ISFET には次のような特徴がある。

- (1) 電界効果を利用するため、イオン感応膜の導電性は必ずしも必要でなく、理想的な絶縁物も材料として用いることができる。ただし絶縁物の膜厚は数千 Å の薄膜であることが条件となる。このことは新しいイオン感応膜の開発の可能性と、他方電解液 — 絶縁物の界面現象の一つの新しい研究手段とを提供することになる。
- (2) 薄膜センサの特徴として応答時間が速い。応答時間は電気的なものと電気化学的のものがあるが、ISFET は増幅器が集積化されているので、フィードバック作用を用いることによって電気回路的な応答時

間は無視しう程に減少することは容易である。また電気化学的な応答時間は感応膜のみの熱平衡条件で定まる。

- (3) FET のフィードバック作用 (ソースホロウ) を用いると、センサの出力抵抗は数 $k\Omega$ 程度に低くでき小形化が容易となる。また電気的妨害は軽減される。
- (4) その他 IC 技術を用いて製作するため、超小形でしかも多重化が容易である。必要ならば増幅やマルチプレクサなどの信号処理回路も一体化することができ、センサ機能の高度化が可能である。

4. ISFET の製作法

生体内の化学成分を調べることは臨床医学にとり極めて重要であり、現在各種の化学分析装置が用いられている。現行の分析法は検体を採取して分析する方法が主であって、患者の病態監視のようにリアルタイムでモニターするには不便である。またセンサを体内に挿入できるように小形化できれば、リアルタイムのモニターが可能となるが、従来のセンサではこのような小形化が困難であった。しかし IC 技術を用いて製作する ISFET ではこのことが可能となる。

Fig. 4 に生体組織中の局所的な成分分析をリアルタイムで行うことを目的として筆者らが試作したプローブ状の小形 ISFET の構造を示す¹¹⁾¹²⁾。ゲート絶縁膜はチャンネルを完全に血液などの電解液から保護する必要がある、またイオン感応膜は液中の特定イオン活量に対応して界面電位を発生することが望ましい。このためゲートは Fig. 4 のように耐水性の優れた Si_3N_4 などで覆い、その上にイオン感応膜を形成する多層構造にするのが合

理的である。

製作法としては不純物拡散、熱酸化、気相成長、蒸着、化学的物理的エッチングなど標準的な IC 製作プロセスを用いて行う。Fig. 4 の ISFET の製作法で特別な点は、a) プローブ状に加工するため異方性エッチングを用い Si 基板を両面加工すること、b) Si_3N_4 膜でプローブ全面を覆い、耐水性を高めていること、c) 不純物濃度の高い拡散層を形成し、絶縁膜の下でドレイン、ソースの配線をしていること、d) 寄生チャンネルを生じないようにチャンネル以外の部分を高濃度の拡散層 (チャンネルストッパー) で覆ったこと、e) イオン感応膜をゲート表面に形成したこと、などである。

絶縁膜を電解液に対し +1.0 V 以上の正電位にすると膜の絶縁性が劣化するので、n チャンネル ISFET では飽和カロメル電極に対してゲートバイアス電圧が +1.0 V を越えぬようデプレッション形にするのが望ましい。なお試作 ISFET の電気的諸特性は通常の IGFET と略同様であるので、以下イオン選択特性についてのみ説明する。

5. イオン選択特性

ISFET のイオン選択特性はイオン感応膜 (ISM) の特性およびその組成によって決定される。ISM を電子工学的な動作機構から分離すれば、a) 絶縁性のもの、b) 導電性のもの、とに分けられる。電気化学的な面から考えると、a) 分極性のもの、b) 不分極性のもの、とに大別されよう。その他 ISM の材料の面、あるいは用途の面など種々分類が可能である。以下特長のある例を挙げ具体的に説明する。

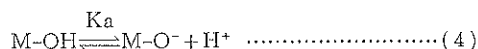
5.1 絶縁性 ISM

絶縁性 ISM は電界効果形イオンセンサで始めて利用可能となったもので、その動作機能も従来の導電性 ISM と異なることが多い。そこで始めに絶縁性 ISM の動作機構について述べる。

A) EIS 構造の界面電位

水和しない無機絶縁膜や表面解離基の少ない有機絶縁膜においては、絶縁膜表面の単分子層程度で解離平衡を生ずる。このような場合は Site Binding Model を用いて界面電位を解析すると都合がよい¹³⁾。

簡単のため絶縁膜は表面に 1 価の酸解離基 $\text{M}-\text{O}^-$ のみが存在し、これが電解液中の H^+ との間で次のような解離平衡を生じていると考える。



ただし、 K_a は解離定数であり、絶縁物の材料定数である。また解離平衡によって界面に電気二重層が形成さ

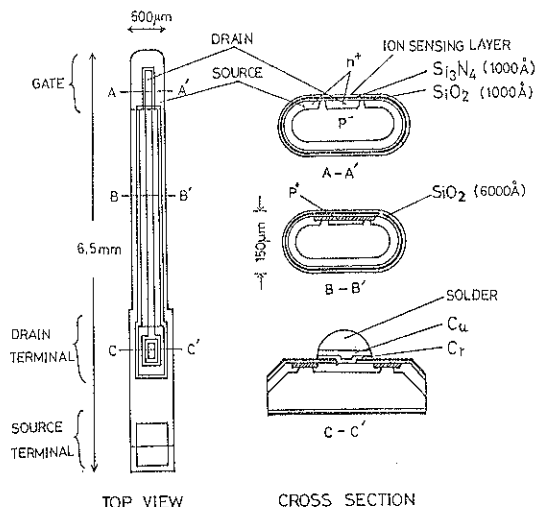


Fig. 4 Structure of the ISFET (n-channel of $30\mu\text{m} \times 1\text{mm}$)

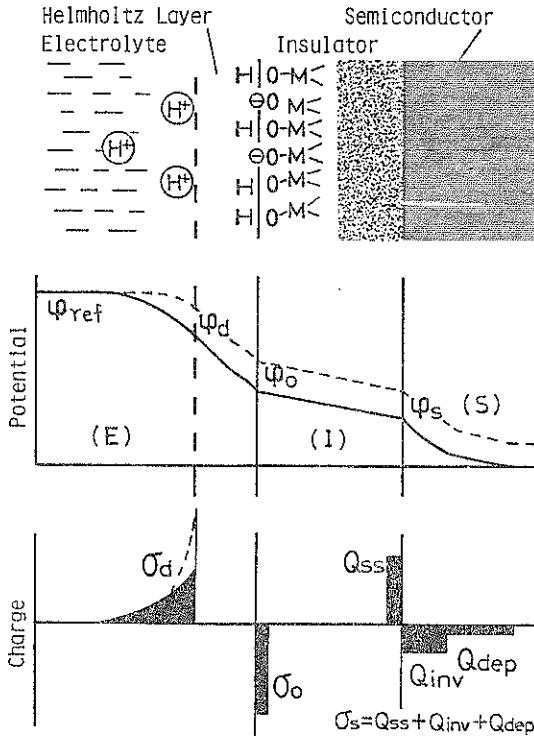


Fig. 5 Illustration of the Site Binding Model and its charge and potential profile of an EIS system. Dashed curves are for high φ value. (φ_{ref} , φ_d are potentials of electrolyte and diffuse layer respectively. φ_0 , φ_s are surface potentials of insulator and semiconductor respectively. σ_d , σ_0 , σ_s are charge densities of diffuse layer, surface dissociated sites and semiconductor respectively. Q_{ss} , Q_{inv} and Q_{dep} are charge densities of fixed charge in the insulator, inversion layer and depletion layer respectively.)

れ、界面電位が発生する。

Fig. 5 は EIS 構造の説明図であり、界面電位と対応する電荷の分布の模様を示す。ただし、ここでは絶縁膜表面に吸着イオンはないものとしている。

同図において界面の電荷釣り合い条件から

$$\sigma_d + \sigma_0 + \sigma_s = 0 \quad (5)$$

ただし σ_d は電解液側拡散層の電荷密度、 σ_0 は絶縁膜表面の解離基の電荷密度、 σ_s は半導体側全電荷密度とする。

Fig. 5 のモデルから定性的に次のことが明らかである。

(1) σ_0 , $\sigma_d \gg \sigma_s$, すなわち σ_s の効果が無視できる場合:

電解液のイオン濃度 C^0 が大きい場合は同図に点線に

示すように拡散層の溶液側への拡がりは無視できる。この場合は表面解離基電荷密度 σ_0 は表面基の解離平衡のみで定まり、絶縁膜表面電位 φ_0 は C^0 に無関係に Nernst の式で与えられる。これは ISFET として望ましい条件である。

他方もし C^0 が極めて小さい場合は拡散層の溶液側への拡がりが無視できず、 C^0 が小さくなるほど溶液中での電位変化が大きくなり、 φ_0 は Nernst の式で与えられる値より小さくなる。更に絶縁膜表面の解離基密度に最大値 N_s が存在する場合は、液中のカチオン (H^+) 濃度が N_s を越えると σ_0 が飽和状態となるので、 φ_0 はカチオン濃度に無関係となる。しかし、 C^0 によって拡散層の拡がりが増えるので、 φ_0 は C^0 の関数となり、この領域はイオン濃度センサとして作用する。

(2) σ_s の効果が無視できない場合:

通常の場合 σ_s の効果は無視できるが、 N_s が小さく、かつ σ_0 と σ_s が同程度の値になると、 σ_s の影響が電解液側に現われる。もし σ_s を何らかの手段で制御できれば、 $\sigma_s = 0$ すなわち $\varphi_0 = 0$ にすることができる。絶縁物表面が point zero charge または解離基飽和の状態において $\sigma_s = 0$ の条件が成立すれば、イオン濃度 C^0 またはカチオン濃度が増加しても $\Delta\varphi_0 = 0$ となる。このような状態が実現できれば比較電極用 ISFET として利用できる。

B) 無機絶縁膜

Si_3N_4 , Al_2O_3 , Ta_2O_5 などの水和しない無機絶縁膜を用いた ISFET は優れた H^+ 選択性を示す。これらの膜を気相成長法で $1000 \text{ \AA}$ ほどの厚さで形成したもののイオン選択性を **Fig. 6** に示す^{11), 12)}。なおイオン選択性を

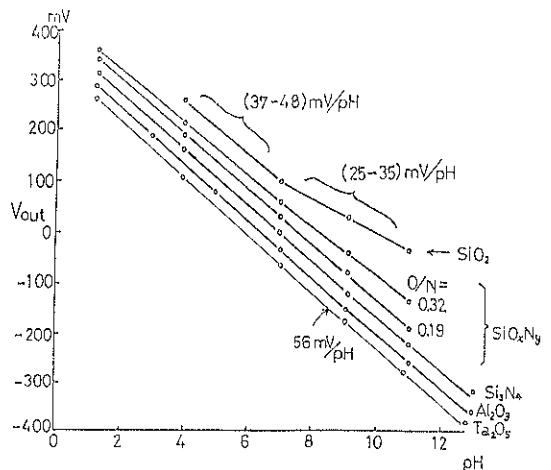


Fig. 6 pH response curves of various type pH ISFETs using inorganic gate films. (V_{ds} , I_d are constant, V_{gs} is 0V, Reference: SCE)

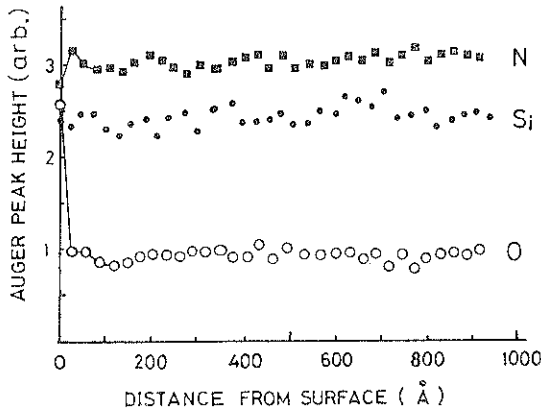
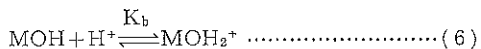


Fig. 7 Compositional profile of the Si_3N_4 surface (after aging in water 14 hours)

測定するために、ドレイン・ソース間電圧 V_{ds} ならびにドレイン電流 I_d を一定とし、膜電位の変化がソース出力電圧 V_{out} となるようソースホロア回路を用いている。

pH 1~13 の範囲で $\text{SiO}_2 < \text{Si}_3\text{N}_4 < \text{Al}_2\text{O}_3 < \text{Ta}_2\text{O}_5$ の順に Nernst 応答に近い感度を示し、アルカリイオンに対し殆んど応答しない。Fig. 6 のような pH の広範囲の応答を説明するためには、(4)式の酸解離のほかには次式の塩基解離も考える必要があろう。



またこれら無機絶縁膜の表面電位は液中のイオン濃度に殆んど依存しないので、最大解離密度 N_s は充分大きいと判断される。

一方 pH のステップ状変化に対し 0.1 秒以下の速い応答をする。このことは解離平衡に関与しているのが膜表面の単分子層のレベルであることを示すものである。またこのことは Fig. 7 の Si_3N_4 膜の表面組成のオーグメント分析からも類推できる¹¹⁾。

C) 有機絶縁膜：

疎水性有機高分子膜はイオン交換基や解離基を極めて少なくすることができるので、これをゲート膜に用いることによりイオン濃度や H^+ に応答しない ISFET ができる。Fig. 8 はイオンビームスパッタ法により形成した 1000 Å 厚のテフロン膜を用いた ISFET の pH 応答である¹⁴⁾。完全に表面基のない膜を形成することができないため、ある程度 pH による界面電位変化を生じており、また液中のイオン濃度で電位が変化する領域（表面解離基の飽和領域）がある。このような現象はパリレン膜を用いた場合も同様であった。

Fig. 8 の実験結果は、この ISFET を 0.1 モルほどの高濃度の溶液（例えば血液）中で使用すれば、界面電位

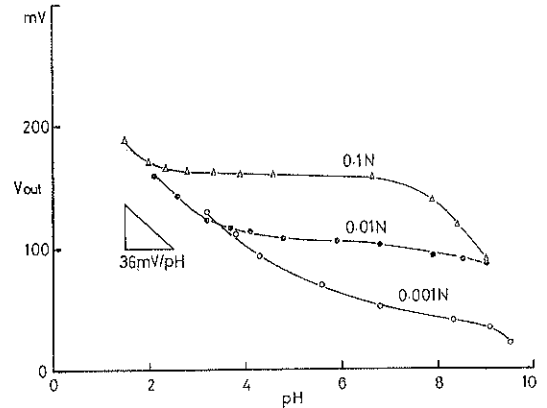


Fig. 8 pH response curves for a Teflon gate ISFET in $\text{HCl} + \text{NH}_4\text{OH}$ solution. (Reference electrode: SCE, Ion concentrations are; ○: 0.01 N, ●: 0.01 N, △: 0.1 N)

の変化が極めて僅かであるのでこれを基準電極とし、通常の ISFET と差動接続し、かつ液電位を Pt 電極で固定すれば、液絡部のない完全固体化した小形のイオンセンサーができる。

5.2 導電性 ISM

導電性 ISM は従来の ISE の分野で広く研究されており、ガラス膜、固体膜、液膜、高分子膜に分けることができる。導電性 ISM を用いる ISFET においては、界面電位発生機構は従来の ISE と同様に考えてよいので、如何にしてこれをゲート絶縁膜上に接合するかが最大の問題点となる。また導電性 ISM は膜厚に制約はないが、厚くすれば応答が遅くなる。いろいろなタイプのもので研究されているが、ここでは特長ある例を示すことにする。

A) ガラス膜：

$\text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{M}_2\text{O}$ の三元系ガラスの MAS 膜(M: アルカリ金属)は Na^+ , K^+ 感応膜としてよく用いられている。MAS ガラスと同じ成分を有するガラス膜を、金属アルコレートの加水分解法やスパッタ法により ISM としてゲート上に形成すると Na^+ , K^+ に応答する ISFET ができる^{11), 12)}。現在筆者の研究室では加水分解法により、M として Na, K, Li を用いた NAS, KAS, LAS 膜を用いた pNa, pK 用 ISFET を試作している。そのイオン選択性に関する実験結果は略 Eisenman のガラス電極の理論によって説明できる。すなわち MAS ガラスは水和し M^+ が溶出するが、MAS 層中の M は液中の H^+ との間でイオンを交換するため界面電位を発生する。ISFET ゲート上の MAS 層もガラス電極表面の膨潤層と同様の状態となっていると推定されるが、しかし MAS 層が完全に溶解すると、再び、 Si_3N_4 膜の

Table 1 Summary of chemical response of pH, pNa and pK ISFETs.

		SENSITIVITY (mV/pX)	SELECTIVITY	RESPONSE TIME (sec.)	HYSTERESIS (mV)	LONG TERM DRIFT (mV/our)	LIFE TIME (hour)
pNa	LAS	47-52	$K_{KNa} < 200$	> 10	2	0.2	< 2000
	NAS	40-50	< 100	> 20	5	1.0	< 800
pK	NAS	40-50	$K_{NaK} < 20$	> 30	5	20	48
	KAS	40-50	< 40	> 30	3	15	48

pH ISFET となる。

MAS ゲート ISFET は同じ組成の通常のガラス電極に比べ、 Na^+ に対する K^+ の選択性 K_{KNa} が2倍大きく、また pNa 用としては LAS 膜、pK 用としては KAS 膜が優れている、などの特長を有する。

B) 高分子膜：

均一系および不均一系高分子膜を用いた ISFET の報告も多い^{15), 16)}。すなわち感応膜には支持体として PVC などの高分子膜を用い、イオン交換物質を支持体中に包括あるいは架橋法などにより埋め込む。不均一系感応膜では有機系イオン交換物質の代りに無機塩類を PVC 膜中に分散させている。 K^+ に対しバリノマイシンやクラウンエーテルが、 Ca^{2+} に対しては p-(1, 1, 3, 3-tetramethylbutylphenyl) phosphoric acid などが用いられている。有機イオン交換体を用いることによって感度や選択性を格段に向上させることができるが、寿命はイオン交換体の流出によって定まり、また膜厚が 100 μm 程度になるため応答時間が遅くなる。

最後に参考のため、現在研究室で試作している各種 ISFET の諸特性を纏めて Table 1 に示しておく。

6. む す び

以上 ISFET の概要について説明した。ISFET を実用化する上での問題点は、如何にして液中で安定に動作させるかであり、耐水性の優れたパッケージング法、絶縁物中への好ましからぬイオンの侵入による長時間ドリフトの改善など、解決されるべき点も多い。しかし他方このデバイスはゲート表面の化学修飾によって液-膜の界面現象の解明の一つの新しい研究手段を提供するものと期待できよう。また IC 技術の超微細加工技術によっ

て μm の桁の超小形化も不可能ではなく、これによって新しい応用分野を開けることも考えられる。FET センサの今後の発展を期待したい。

文 献

- 1) P. Bergveld: IEEE. Trans. BME, **BME-17** (1970) 70.
- 2) P. Bergveld: IEEE, Trans. BME, **BME-19** (1972) 342.
- 3) 松尾他：電気関係学会東北支部連合大会予稿 (1971) 28.
- 4) 松尾他：第12回日本ME学会大会予稿 (1973) 507.
- 5) T. Matsuo et al: IEEE Trans. BME, **BME-21** (1974), 485.
- 6) S.D. Moss et al: Anal. Chem, **47** (1975) 2238.
- 7) I. Lundström et al: J. Appl. Phys. **46** (1975) 3876.
- 8) J.N. Zemel: Anal. Chem, **47** (1975) 255 A.
- 9) P. Cheung et al eds: Workshop on Theory, Design and Biomedical Application of Solid State Chemical Sensors, CRC Press, Cleveland, Ohio (1978).
- 10) J. Janata et al: Chemically Sensitive Field Effect Transistors, Ion-selective Electrodes in Analytical Chemistry (ed H. Freiser) Vol. II (1980) Plenum Press p. 107.
- 11) T. Matsuo et al: Sensors & Actuators, **1** (1981) 77.
- 12) 松尾他：応用物理 **49** (1980) 586.
- 13) W.M. Siu et al: IEEE, Trans ED, **ED-26** (1979) 1805.
- 14) H. Nakajima et al: J. Electrochem. Soc. **129** (1982) 141.
- 15) S.D. Moss et al: Anal. Chem. **47** (1975) 2238.
- 16) P.T. Mcbridge et al: Anal Chim. Acta., **101** (1978) 239.