2 マイクロマシーニングにより作製される電気化学センサの現状

鈴木 博章

1 はじめに

21世紀を目前にし、「高齢化」、「環境」、「情報化」の3つの点について、社会が大きく変わりつつあることは誰しもが認めるところである。このいずれについてもセンシングに大きな期待が寄せられており、その中でも電気化学的センサが重要な位置を占めていることは、敢えて言うまでもないであろう。この流れの中で、微小化、一括大量生産による低コスト化は、避けて通れないと考えられる。半導体プロセス技術、マイクロマシーニング技術は、これらを実現しうる極めて有効な手段であり、近年これらの技術を電気化学センサの作製に応用する試みが活発に行われるようになった。また、個別のセンサだけでなく、複数のセンサやマイクロポンプ等のアクチュエータを統合した微小化学分析システム (μ TAS: Micro Total Analysis System) の研究も、ますます活発化しつつある。しかしながら、これらマイクロセンサ、マイクロシステムの現状については、当事者でなければわかりにくい点も多い。本報では、筆者の研究を中心に、マイクロ化学センサの現状について概説する。

2 化学センサの微小化に用いられる微細加工技術

ISFET (Ion Sensitive Field-Effect Transistor) に代表されるマイクロ化学センサの歴史は'70年代にさかのぼる。'80年代はISFETが研究の中心で、これ以外ではプレーナ型グルコースセンサやマイクロ酸素電極等わずかなセンサが、

世界的に見てもごく一部の研究機関で作られていたにすぎなかった。'90年代に入り、Manzらによる μ TASの提案を契機に¹⁾、システム化も重要な課題となった。これに伴い、三次元的な微細構造の必要性も増大し、実に多様な微細加工技術が用いられるようになった。また、このような微小化と並行して、安価なディスプレイセンサの必要性が高まるにつれ、スクリーン印刷を利用したセンサの研究例も'90年代に入り急増している。Table 1には、このようなマイクロ化学センサ、マイクロシステムの作製に用いられる微細加工技術をまとめた。電極等のパターン形成に用いられるフォトリソグラフィの他、実に多様な技術が使われていることがわかる。これらがどのように使われるのかについては、以下の具体例よりご理解いただけるであろう。

3 参照電極の微小化とポテンシオメトリックセンサの複合化

3.1 参照電極の微小化の手法と問題点

ISFETの登場以来、数多くのマイクロイオンセンサが発表された。しかし、大多数の研究例では、指示電極のみ微小化し、参照電極は従来のマクロなものを使用しており、この状況は現在でも依然として続いている。この点を改善すべく、参照電極を微小化する幾つかの試みがなされている。これまでのアプローチは、以下のように分類できる。

(1) 金属薄膜を直接被検液に接触させたもの。例えば、薄膜

Table 1 Microfabrication techniques used for micro chemical sensors and biosensors.

Techniques or materials	Applications
[Pattern formation techniques]	
Lift-off	Electrode patterns, immobilization of enzyme
Screen-printing	Electrode patterns, electrolyte layer, immobilization of enzyme
Photo-sensitive polymers	Insulation, container, flow-cell, electrolyte layer, liquid junction, immobilization of enzyme or microorganism, ion-sensitive membrane, diffusion-limiting membrane
Masking	Electrode patterns
Electrochemical deposition	Electrode patterns, immobilization of enzyme
Ink-jet	Immobilization of enzyme
[Etching techniques]	
Anisotropic etching	Container, flow-cell, liquid junction, needle-type probe
Etch stop	Needle-type probe, ribbon cable
Isotropic etching	Electrode patterns, flow-cell
Dry etching	Patterning of diffusion-limiting membrane
[Bonding techniques]	
Anodic bonding	Container, flow-cell
Lamination	Formation of an electrolyte layer
[Through-hole formation]	
Electrochemical drilling	Through-hole
Sandblasting	Through-hole
[Others]	
Porous silicon	Sensitive layer, liquid junction
Dicing saw	Dicing, flow-cell, arrays of microelectrodes

状銀/塩化銀を、被検液を含む塩素イオンの活量が一定の水溶液に接触させたもの。

(2) 液絡のない固体参照電極と呼ばれるもの。銀/塩化銀電極で、適度な濃度の Cl^- イオンを Nafion 等の陽イオン交換膜で閉じこめたものや、比較用 ISFET (REFET) に多く見られるイオン“不”感応性膜を用いたものがこれに相当する。

(3) 従来の液絡付き参照電極をそのまま微小化したもの。

(1) は簡便な方法ではあるが、平衡に主に関わるイオンの活量を厳密に制御しなければならず、使われる状況が限定される。(2) では、膜の選択透過性により新たな界面電位を生じたり、参照電極としては好ましくない分極性の界面が形成される等、一つの問題の解決により、新たに別の問題を生じる。いずれの場合も、組成が未知のサンプルを、無希釈かそれに近い状態で調べる場合には、参照電極の電位が予想できない。結局、実用レベルで使用に耐えうるものとしては、(3) が最も有望と考えられる。

マイクロ化学センサでは、通常プロセスとの整合性の良い銀/塩化銀が Fig. 1 (a) の構造で用いられる。しかし、この構造には重大な問題がある。塩化銀は高濃度の KCl 中で錯イオン $\text{Ag}_n\text{Cl}^{-(n-1)}$ ($n=2\sim3$) を形成して溶解するが²⁾、薄膜ではこれが耐久性に大きく影響する。(a) の構造は非常に劣化しやすく、飽和 KCl/AgCl 中でその寿命は問題にならないほど短い。そこで、(b)、(c) に示す構造を考案した^{3,4)}。この構造では、銀薄膜表面が撥水性層で被覆され、塩化銀は薄膜端部、あるいは撥水性層中央部のスリットから薄膜内部に形成される。約 80% を塩化銀に変えた (c) の構造は、飽和 KCl/AgCl 中で 30 時間以上銀/塩化銀として期待される安定な電位を維持し、最後は負の方向への顕著な電位変化を伴って破損した。同じ条件で (a) の従来型構造の耐久性を調べたところ、10 分以内に破損し、新型構造が桁違いの耐久性を有することが確認された。これは、従来の参照電極と同様に、内部電解液に飽和 KCl を用い、液絡で内部と外部を接続する構造を薄膜でも可能にした点で、大きな前進であった。

3.2 銀/塩化銀参照電極の微小化

Fig. 1 (d) には内部電解液に飽和 KCl/AgCl を用い、液

Fig. 1 (a): currently-used thin-film Ag/AgCl element, (b), (c): novel thin-film Ag/AgCl element, (d): a microfabricated liquid-junction Ag/AgCl reference electrode. The dimensions of the chip are 1.5 mm $\times$ 13 mm.

絡を設けた微小参照電極の一例を示す⁴⁾。銀/塩化銀構造は Fig. 1 (c) のものを使用した。液絡 (幅 50 μm , 厚さ 10 μm) は光硬化性ポリマー (関西ペイント製, ENT-2000) により形成した。内部電解液中の KCl の絶対量が寿命に影響するため、KCl 微粉末を含む電解質層をスクリーン印刷により形成した。電解質ペーストは、KCl 微粉末をポリビニルピロリドン (PVP) /2-プロパノール中に分散させ、調製した。これらを覆うように、シリコンゴムのパッシベーションを形成した。飽和 KCl/AgCl 溶液 10 μl をマイクロシリンジでパッシベーションを通して注入することにより、電極を活性化した。

この参照電極は、銀/塩化銀として期待される電位を 100 時間以上維持することができた。この場合、寿命は Cl^- の絶対量で決まり、寿命が尽きる時には内部電解液中の Cl^- 活量の減少により、+方向への電位のドリフトが見られた。正常に機能している間の電位の変動は ± 1.0 mV 以内であった。また、各瞬間での電位の揺らぎは 0.1 mV 以下であった。なお、この結果から、電解質の担体として用いている PVP が塩化銀層の溶解をより一層効果的に抑制し、薄膜状銀/塩化銀の寿命をさらに延ばす効果があることも示された。また、外部 KCl 濃度依存性、pH 依存性を調べたところ、特に目立った傾向は確認されなかった。

3.3 pH 指示電極とのワンチップ化

3.2 節の参照電極の実用性を確認するため、イリジウム酸化膜 pH 指示電極とのワンチップ化を試みた。3.2 の参照電極と同じ大きさのチップ上にイリジウム酸化膜パターンを形成し、参照電極を形成した基板と背面同士を接着した。イリジウム酸化膜は、1 M ($\text{M}=\text{mol cm}^{-3}$) LiClO_4 中にて電位掃引法により形成した。集積化参照電極とマクロな参照電極を用い、外部液に浸漬保存後、1 時間後と 25 時間後に指示電極電位を測定した (Fig. 2)。それぞれの参照電極を基準とした指示電極電位は良い一致を示した。2 つの時間での電位のずれは、明らかに指示電極側の経時変化によるものである。また、このワンチップ pH センサは挿入図のように明瞭な応答を示した。

参照電極の微小化が実現されると、3 電極系の微小化も可能である。既に、微小参照電極と、白金薄膜で形成した作用電極、対極を集積化したチップが作られ、サイクリックボルタンモグラム等により動作が確認されている^{5,6)}。これらの微小参照電極については、薄膜状銀/塩化銀構造、液絡構造に改良を加えることにより、さらに長寿命化が可能と考えている。

4 Severinghaus 型二酸化炭素電極の微小化

血液分析等では、二酸化炭素分圧 ($P(\text{CO}_2)$) は酸素分圧 ($P(\text{O}_2)$)、pH とともに重要な測定項目の一つであり、微小で、ディスプレイ可能な二酸化炭素センサが求められている。通常、この用途には Severinghaus 型電極が用いられている。この電極は、ガス透過性膜により検出用電極等必要な構成要素が外部から隔離された構造になっており、二酸化炭素がこの膜を透過し、感応部の薄い電解液層に浸入した時の局所的な pH 変化を測定する。

Fig. 3 に微小二酸化炭素電極の例を示す⁷⁾。ガラス基板上に骨格となる金/クロムパターンを形成し、この上に pH 検出用イリジウム酸化膜と銀/塩化銀参照電極を形成した。こ

Fig. 2 Dependence of the indicator electrode potential on pH. The reference electrodes were ○: the miniature reference electrode, ●: a macroscopic Ag/AgCl reference electrode. The inset shows the response curve of the one-chip pH sensor to pH step changes. The numerals indicate the pH at the corresponding stabilized level which was simultaneously measured with a pH glass electrode. An arbitrary amount of NaOH was added to a 5 mM KH_2PO_4 solution at the times indicated by arrows.

Fig. 3 Structure of the micromachined carbon dioxide electrode. The dimensions of the chip are 1.5 mm × 13 mm.

の種の微小二酸化炭素電極には ISFET が pH 検出素子として使われてきたが⁸⁾, イリジウム酸化膜は低インピーダンスであり, 図に示した程度の大きさであれば, ISFET によるインピーダンス変換も必要なく, それだけで安定な応答が得られる. 銀/塩化銀は Fig. 1 (b) の構造のものを使用した. 電解液用容器はシリコン基板上に異方性エッチングにより形成した. 異方性エッチングは, エッチング速度が結晶面により顕著に違うことを利用するもので, 数百 μm にも及ぶ深いエッチングを精度良く施すことができるため, 微小容器や流路の形成にしばしば用いられる. イリジウム酸化膜-ガス透

過性膜間には両面からエッチングし, 200 μm とした. シリコン基板の感応部にガス透過性膜となるシリコンゴム膜を形成後, 2 枚の基板を光硬化性接着剤で接着した. 電解液は一定濃度の NaHCO_3 を含む 0.1 M KCl 溶液を使用し, 脱気と遠心分離により微小容器内に導入した.

Severinghaus 型電極の挙動は Ross のモデルにより説明され, 応答時間, 検量線の傾き等は, 二酸化炭素分圧 (濃度) の変化量, 変化方向, 内部液の NaHCO_3 濃度等に依存する⁹⁾. Fig. 4 に検量線を示す. 内部電解液中の NaHCO_3 濃度が小さくなるにつれ検出限界は低濃度側にシフトし, わずかながら傾きは減少した. 挿入図には応答曲線の例を示す. 明瞭な応答が認められ, 変化量が大きくなるほど応答が速くなる傾向が認められた. また, 増加する変化の方が, その逆の変化よりも応答が速かった. 以上の結果は, 理論的な予測およびマクロな二酸化炭素電極による実験結果と一致する^{10, 11)}.

なお, 内部電解液中の NaHCO_3 の代わりに NH_4Cl を用いると, 同様の原理に基づくアンモニアガス電極を作製することもできる. しかし, 90% 応答時間が数十分と全く使用に耐えなかった¹²⁾. この種のマイクロセンサのガス透過性膜には, 密着性の関係でマクロなガス電極に用いられる多孔性 PTFE (poly(tetrafluoroethylene)) 等を用いることができず, 現状ではシリコンに代わりうる適切な材料が存在しない. この点, 何らかの解決策が見いだされれば, これらのセンサの性能も実用レベルのものが実現できると思われる.

この微小二酸化炭素電極を用いた尿素センサも作られている¹²⁾. また, L-アミノ酸センサ等のバイオセンサのトランスデューサとしても使用することができ, ディスポーザブルセンサとしてその特長を活かすこともできる.

5 Clark 型酸素電極の微小化とその応用

Clark 型酸素電極は酸素をアンペロメトリックに測定するデバイスで, ガス透過性膜により検出用電極群と内部電解液が外部の被検液から隔離された構造になっている. 最近 20 年間にさまざまな微小酸素電極が提案された¹³⁻¹⁹⁾. 現在で

Fig. 4 Calibration curve for the carbon dioxide electrode. CO_2 was generated by acidification of a NaHCO_3 standard solution in dilute H_2SO_4 . The indicator electrode potential was plotted against the added NaHCO_3 concentration. Internal electrolyte solution contains 50 mM (○), 20 mM (■), and 10 mM (△) of NaHCO_3 . The inset shows typical response curves. The reverse response was examined by adding a NaOH solution. The experiments were conducted at 25°C.

は既に確立された技術となっており、市販されるまでに至っている²⁰⁾。

これまでに作られた微小酸素電極の構造はバラエティーに富んでいるが、例えば前節の二酸化炭素電極と構造的に類似のものが作られている¹⁹⁾。ガラス基板上にイリジウムの代わりにカソードとなる銀薄膜パターンを形成し、ポリイミド層により活性部を確定した。アノードには銀/塩化銀を使用した。電解液を蓄える容器は、シリコン基板上に異方性エッチングにより形成し、感応部にはシリコンのガス透過性膜を形成した。ガラス基板とシリコン基板は、光硬化性接着剤により接着した。なお、シリコンとガラスの表面が清浄であれば、高電圧を基板間に印加することにより強固に接着することもできる(陽極接合)¹⁷⁾。電解液は0.1 M KClを含む0.1 M Tris-HCl緩衝液(pH 8.5)を使用し、前節と同様にして導入した。

近年発表された微小酸素電極では、90% 応答時間は短くて数秒、長くても1分以内であり、応答は安定かつ明瞭である。酸素分圧0の状態での残余電流もほとんど無視できるものも得られる。その他、安定性も含め、応答特性についてはマクロな市販品に匹敵するものが得られるようになった。ただ、寿命については、銀あるいはCl⁻の絶対量で決まるため、連続使用で数時間~数十時間に制限される。なお、この微小酸素電極のように、2電極系あるいは3電極系がボールペンの先ほどの空間に集積化される場合、お互いの電極反応生成物の影響(電気化学的クロストーク²¹⁾)が無視できなくなる。これを抑制するためには、電極の形状、相互の位置関係、電解質層(容器)の形状等も重要になってくる。上に述べた性能は、この点まで十分に考慮された上で初めて実現されるものである。

なお、 μ TASのように、微量サンプルを滞留あるいはこれに近い形で測定する場合には、カソードに於ける酸素消費についても最適化が必要である。カソードの大きさを変えた時の影響は、出力電流値の流速依存性にはっきり現れる。感応部を空気飽和させたリン酸緩衝液に浸漬し、緩衝液を攪拌した状態と攪拌しない状態での電流値の変化を調べた。500 μm^2 のカソードの場合、攪拌状態での電流値に対し、11~13%の違いが認められた。これにより、拡散層が少なからずガス透過性膜の外側にまでしみ出していることが示唆された。しかし、カソードを小さくするにつれ、流速依存性は小さくなる傾向が認められ、25 μm^2 のカソードの場合、違いは1~4%になった。これは酸素分子の平面状拡散が微小電極特有の球面状拡散に変わった結果、拡散層がガス透過性膜内部に収縮し、攪拌の影響を受けにくくなったことが原因と考えられる。この結果から、より小さいカソードを用いることにより、静置した微量サンプル中での測定精度の向上も期待できる。そこで、ヒトの全血(静脈血)の $P(\text{O}_2)$ を測定し、血液分析装置(Chiron 248)により求めた値と比較した(Table 2)。カソードが小さくなるにつれ、測定値は血液分析装置で求めた値に近づくことが確認された。

微小酸素電極を用いたバイオセンサも作られている。この型のバイオセンサは、溶存酸素濃度の変動や、電流値の減少分を測定する等の技術的な問題がある。しかし、最大の利点はその優れた選択性にある。Fig. 5は微小酸素電極をトランスデューサとしたグルコースセンサによる尿糖値の測定結果を示す¹⁸⁾。過酸化水素型センサ、メディエータ型センサで問

Table 2 Comparison of the $P(\text{O}_2)$ values obtained by the miniature oxygen electrode and a blood gas analyser (Chiron 248). Sample volume: 200 μl . The experiment was conducted at 37°C.

Cathode dimensions (μm^2)	Oxygen electrode (a: mmHg)	Analyser (b: mmHg)	$ a-b /b$ (%)
300×300	33.0	40.5	18.5
	40.7	39.8	2.3
200×200	111.3	98.8	12.7
	40.2	33.9	18.6
100×100	28.7	24.4	17.6
	44.1	40.5	8.9
50×50	42.7	45.7	6.6
	42.4	40.0	6.0
25×25	26.3	24.4	7.8
	37.6	39.8	5.5

Fig. 5 Comparison of the values of urinary glucose concentration obtained by the sensor and a conventional spectroscopic method. The urine sample was diluted by 200 times.

題となる、L-アスコルビン酸、尿酸等の妨害物質の影響が認められず、従来の分光学的方法との間に良好な相関関係が認められた。また、呼吸活性の変化を検出する微生物センサのように、酸素電極が不可欠なものもある。BODセンサはその典型であるが、微小酸素電極を用いたディスプレイBODセンサも作られている²²⁾。

6 $P(\text{O}_2)$, $P(\text{CO}_2)$, pH 測定用微小集積化モジュールと μ TASへの展開

酸素、二酸化炭素、pHは、同時測定が好まれる場合が多い。3つのセンサを微小なチップ上に集積化して*in vivo*で使用する試みもあるが、例えば μ TASの構成にしたオンライン計測も一つの現実的な方法と考えられる。血液ガスの場合、人体に異常が生じた場合の変化が急激であるため、サンプル量が微量で済み、その場で迅速に測定が可能な μ TASは、その真価を存分に発揮できると考えられる。

Fig. 6に μ TASに組み込むことを意図して作られた集積化モジュールを示す²³⁾。ガラスとシリコンからなるチップ上に酸素電極、二酸化炭素電極、pH複合電極を形成した。これらの基本的な構造は、これまでに述べた単体のものと同じである。内部電解液用の容器は、シリコン基板上に異方性エッ

Fig. 6 Integrated sensing module for $P(O_2)$, $P(CO_2)$, and pH. Dimensions of the chip are 7.0 mm $\times$ 19.2 mm.

チングにより形成し、基板裏面には容器と直交する微小流路を設けた。基板両面のこれら直交する凹部の交差部は貫通孔になり、ここに酸素電極と二酸化炭素電極についてはガス透過性膜が、pH電極用の参照電極については液絡が形成されている。個々のセンサの特性は、既に述べた単体のセンサの特性とほぼ同様であるため、詳細は省略する。既に述べたように、このようなモジュールあるいはシステムを構築する上で最大の難題は、液絡を有する汎用的な参照電極の集積化であった。Fig. 6のモジュールはこのような参照電極がワンチップ化された最初の例である。

ここでは、筆者らの作製したモジュールの例を示したが、これ以外にも他のグループにより、ISFETを主体にしたモジュールが作られている^{24, 25)}。現在の技術水準では、センサとアクチュエータを1チップ上にすべて集積化するのは非常に難しい。このため、現実的な方法として、Fig. 6のようにシステムの主要な要素をモジュール化し、幾つかのモジュールを積層する方式が提案され、試みられている^{26, 27)}。

7 おわりに

これまでのマイクロ化学センサの研究では、微小化の実現が最重要課題となっており、その測定精度や信頼性については、今後の課題として残されてきた感がある。これからは、微小であるだけでなく、実用に耐えうるということも強く求められてくるであろう。また、 μ TASのようなシステム化ということも重要な課題である。このためには、センサだけでなく、マイクロポンプ等、アクチュエータという異種の技術も積極的に取り入れてゆかねばならない。ここでは、マイクロ電気化学センサの現状をご理解いただくため、できる限り多くの話題を取り上げた。このため、内容的にはあまり細部にまで触れることができなかったが、この点は参考文献をご覧いただくことでご容赦願いたい。このような電気化学の一分野も存在するというをご理解いただければ幸いである。

文 献

- 1) A. Manz, N. Graber, and H. M. Widmer, *Sensors and Actuators*, **B1**, 244 (1990).

- 2) S. Ito, H. Hachiya, K. Baba, Y. Asano, and H. Wada, *Talanta*, **42**, 1685 (1995).
- 3) H. Suzuki, A. Hiratsuka, S. Sasaki, and I. Karube, *Sensors and Actuators*, **B46**, 104 (1998).
- 4) H. Suzuki, H. Shiroishi, S. Sasaki, and I. Karube, *Anal. Chem.*, **71**, 5069 (1999).
- 5) H. Suzuki, T. Hirakawa, S. Sasaki, and I. Karube, *Sensors and Actuators*, **B46**, 146 (1998).
- 6) H. Suzuki, T. Hirakawa, S. Sasaki, and I. Karube, *Anal. Chim. Acta.*, **387**, 103 (1999).
- 7) H. Suzuki, H. Arakawa, S. Sasaki, and I. Karube, *Anal. Chem.*, **71**, 1737 (1999).
- 8) K. Shimada, M. Yano, K. Shibatani, Y. Komoto, M. Esashi, and T. Mastuo, *Med. & Biol. Eng. & Comput.*, **18**, 741 (1980).
- 9) J. W. Ross, J. H. Riseman, and J. A. Krueger, *Pure & Appl. Chem.*, **36**, 473 (1973).
- 10) U. Fiedler, E. H. Hansen, and J. Ruzicka, *Anal. Chim. Acta.*, **74**, 423 (1975).
- 11) M. A. Jensen and G. A. Rechnitz, *Anal. Chem.*, **51**, 1972 (1979).
- 12) 鈴木博章, 荒川浩亮, 佐々木聡, 軽部征夫, 日本化学会第77秋季年会講演要旨集, p.289 (1999).
- 13) Y. Miyahara, F. Matsu, S. Shiokawa, T. Moriizumi, H. Matsuoka, I. Karube, and S. Suzuki, *Proc. 3rd Sensor Symp.*, p.21 (1983).
- 14) M. Koudelka, *Sensors and Actuators*, **9**, 249 (1986).
- 15) H. Suzuki, E. Tamiya, and I. Karube, *Anal. Chem.*, **60**, 1078 (1988).
- 16) H. Suzuki, A. Sugama, N. Kojima, F. Takei, and K. Ikegami, *Biosensors & Bioelectronics*, **6**, 395 (1991).
- 17) H. Suzuki, A. Sugama, and N. Kojima, *Sensors and Actuators*, **B10**, 91 (1993).
- 18) H. Suzuki, *Sensors and Actuators*, **B21**, 17 (1994).
- 19) H. Suzuki, H. Ozawa, S. Sasaki, and I. Karube, *Sensors and Actuators*, **B53**, 140 (1998).
- 20) <http://www.fdk.co.jp/sendin/html/sensor-e.html> (FDK corporation).
- 21) C. S. Cha, M. J. Shao, and C. C. Liu, *Sensors and Actuators*, **B2**, 239 (1990).
- 22) Z. Yang, H. Suzuki, S. Sasaki, and I. Karube, *Appl. Microbiol. Biotechnol.*, **46**, 10 (1996).
- 23) H. Suzuki, T. Hirakawa, S. Sasaki, and I. Karube, *Anal. Chim. Acta.*, **405**, 57 (2000).
- 24) S. Shoji and M. Esashi, *Sensors and Actuators*, **B8**, 205 (1992).
- 25) P. Arquint, M. Koudelka-Hep, B. H. van der Schoot, P. van der Wal, and N. F. de Rooij, *Clin. Chem.*, **40**, 1805 (1994).
- 26) J. C. Fetting, A. Manz, H. Lüdi, and H. M. Widmer, *Sensors and Actuators*, **B17**, 19 (1993).
- 27) W. Hoffmann and R. Rapp, *Sensors and Actuators*, **B34**, 471 (1996).

●著者プロフィール

氏名：鈴木 博章 Hiroaki SUZUKI
 所属：筑波大学物質工学系（〒305-8573 つくば市天王台 1-1-1）
 役職：助教授
 趣味：キャンプ、ドライブ