

사진식각법을 이용한 CO₂ 센서 감지막의 제조

박 이 순 · 김 상 태 · 고 광 락*

경북대학교 고분자공학과, *경북대학교 센서기술연구소, 대학원 센서공학과
(1997년 2월 11일 접수, 1997년 12월 1일 채택)

Fabrication of CO₂ Sensor Membrane by Photolithographic Method

Lee Soon Park, Sang Tae Kim, and Kwang-Nak Koh*

Department of Polymer Science, Faculty of Engineering, Kyungpook National University, Taegu 702-701, Korea

*Department of Sensor Engineering, Graduate School and Sensor Technology Research Center,

Kyungpook National University, Taegu 702-701, Korea

(Received February 11, 1997, Accepted December 1, 1997)

요 약 : 감광성 고분자를 감지막 재료로 한 FET(Field Effect Transistor)형 CO₂ 센서를 사진식각법으로 제작하였다. 즉, 바탕소자인 pH-ISFET gate 위에 먼저 Ag/AgCl 기준전극을 형성한 후, 수화젤(hydrogel)막 및 기체투과막의 순서로 감지막을 사진식각법으로 형성하였다. 광가교형 감광성 고분자 poly(vinyl alcohol 또는 poly(vinyl pyrrolidone-co-vinyl acetate)를 감지막의 재료로 할 경우에는 사진식각법으로 용매를 포함하는 일정두께의 수화젤막을 형성하는 것이 어려운 것으로 판단되었다. 광중합 감광성 고분자로서 2-hydroxy methacrylate, acrylamide 단량체를 수화젤막 재료로, polyurethane acrylate oligomer를 기체투과막의 재료로써 사용할 경우 사진식각법으로 용이하게 막의 형성이 가능하였고, 제조된 FET형 CO₂ sensor는 CO₂ 농도 10⁻³~10⁰ mole/l 에서 좋은 직선성을 나타내었다.

Abstract : A FET(Field Effect Transistor) type dissolved CO₂ sensor based on Severinghaus type CO₂ sensor was fabricated by the photolithographic process. The sensor consists of Ag/AgCl reference electrode and membranes (hydrogel membrane and CO₂ gas permeable membrane) on the pH-ISFET base chip. Ag/AgCl reference electrode was fabricated as follows. Ag layer was thermally evaporated and then its upper surface was chemically chloridized into the AgCl. The hydrogel used as an internal electrolyte solution was fabricated by a photolithographic method using 2-hydroxyethyl methacrylate(HEMA) and acrylamide. CO₂ permeable membrane on the top of the hydrogel layer was formed by photolithographic process with UV-oligomer. The FET type pCO₂ sensor fabricated by photolithographic method showed good linearity within the concentration range of 10⁻³~10⁰ mole/l of dissolved CO₂ in aqueous solution with high sensitivity.

1. 서 론

일반적으로 수용액이나 혈액 중의 용존 이산화탄소 분압(pCO₂)의 측정은 의료진단, 화학분석, 환경측정 등의 여러분야에서 큰 의미를 가진다. 특히 혈액 중의 용존 이산화탄소 분압(pCO₂)을 측정함으로써 폐의 환기상태와 폐포의 가스 교환능력 및 체조직으로 수송된 혈액 가스의 양을 판정할 수 있어 pCO₂ 센서는 의료진단 분야에서 매우 중요하다. CO₂의 측정에 대한 최초의 연구는 1957년 Stow[1] 등에 의해 보고되었으며 Severinghaus[2] 등이 이 전극의 성능을 개선하여 현재 널리 사용되고 있는 소위 Severinghaus형 pCO₂ 센서가 개발되었다. Severinghaus형 pCO₂ 센서에서는 시료 용액 중에 녹아있는 CO₂ 기체를 기체 투과막을 써서 일차적으로 용액으로부터 분

리한 뒤 이것을 지시전극인 pH전극을 써서 검출하는 방법이 쓰인다.

그러나 현재 사용되고 있는 CO₂ 센서는 부피가 비교적 크므로 한 번의 측정에 필요한 시료의 양이 많아야 할 뿐만 아니라 장비가 고가이다. 따라서 최근에는 Field Effect Transistor(FET)형 센서와 같이 반도체 집적회로 기술이나 미세가공 기술을 이용한 센서 연구가 활발히 진행되고 있다.

K. Tsukada[3]와 W. Schelter[4] 등은 Si₃N₄ 박막을 갖는 H⁺ ion selective FET(pH-ISFET) 바탕소자의 감지 부분인 gate 주위에 Ag/AgCl로서 기준 전극을 형성하고, 감광성 polyimide를 사용하여 micro-pool을 형성한 다음 젤(gel)상태의 전해질과 기체투과막을 차례로 얻어서 마이크로 pCO₂ 센서를 제작하였다. 그리고 Ph. Arquintd와 A. van den Berg[5] 등은

이와 같은 마이크로 pCO₂ 센서 제작시 공기 중 산소와의 접촉을 차단하기 위하여 UV 노광과정에서 polyester film (O₂ quencher) 을 부착하는 번거로운 사진식각(photolithography)공정법을 사용하여 수화젤 및 기체투과막을 형성하였다.

이상과 같은 관점을 가지고 본 연구에서는, Ag/AgCl 기준전극을 형성한 pH-ISFET를 마이크로 센서의 바탕소자로 하고 사진식각법을 이용하여 수화젤(hydrogel)막 및 가스투과막(gas-permeable membrane)을 형성할 때 polyester film을 쓰지 않고 수화젤막 및 기체 투과막의 형성이 가능함을 밝혔고 그 센서의 제조 공정이 pCO₂ 센서 특성에 미치는 영향에 대해서도 조사하여 보았다.

2. 실험

2.1. 시약 및 장치

감광액 제조에 쓰인 2-hydroxyethyl methacrylate(HEMA), acrylamide 단량체 및 polyvinyl alcohol(PVA), poly(vinyl pyrrolidinone-co-vinyl acetate)(PVP-PVAc) 고분자 재료는 Aldrich Chemical Co.의 시약급을, 그리고 UV-oligomer는 한화(주)의 시제품을 정제없이 사용하였다. 광개시제로 사용된 2,2-dimethoxy 2-phenyl acetophenone(DMPA)는 Fluka제의 시약급을, 감광제로 쓰인 2,6-bis-(p-azidobenzylidene) cyclohexanone(BAC), 가교제로 쓰인 N,N'-methylene bisacrylamide(MBAA), 점증제로 쓰인 poly(vinyl pyrrolidinone)(PVP), O₂ quencher로 쓰인 N,N,N',N'-tetramethyl ethylenediamine (TED)들은 모두 Aldrich사의 시약급을 그대로 사용하였다. Sodium bicarbonate, sodium citrate, citric acid 및 NaCl 등 표준 용액의 제조에 쓰인 염 및 tetrahydrofuran(THF), toluene, glycerine, ethylene glycol(EG) 등 각종 용매도 모두 시약급을 사용하였으며, 또 염 수용액의 제조에 사용된 물은 Millipore사의 Milli-Q System으로 탈염된 물(≥18 MΩ·cm)을 사용하였다. pCO₂ 센서의 drain과 source 사이에 일정한 전압을 걸고 gate와 기준전극 사이의 출력전압의 변화를 측정하기 위하여 전압계로서 2대의 Keithley제 model 197 autoranging microvolt DMM을 사용하였으며, drain과 source사이에 일정한 드레인 전류를 걸어 주기 위하여 전류계로서 Keithley제 model 196 system DMM을 사용하였다. 기록계로서는 Yokogawa사 strip chart recorder를 써서 전압계에 나타나는 ISFET의 출력 전압을 기록하였다. 또한 측정용액의 온도를 일정하게 유지하기 위하여 Neslab Instruments RTE-210 water bath와 water jacket이 붙어 있는 시료용기를 연결하여 항온된 물을 순환시켰다. 수용액 내 용존 이산화탄소의 측정 실험에 쓰인 측정장치의 개략도는 Fig. 1과 같다.

2.2. Ag/AgCl 기준 전극의 형성

FET형 CO₂센서의 바탕소자인 pH-ISFET의 gate부위에 센서의 소형화를 위하여 반도체 제조공정에 부합되는 lift-off법 [6-7] 및 thermal evaporation법으로 Ag/AgCl 기준전극을 형성하였으며 그 과정을 Fig. 2에 나타내었다.

(a) pH-ISFET의 Si₃N₄ 박막 위에 positive-PR(AZ 5124)로 Ag/AgCl 전극이 들어갈 창을 만들었다.

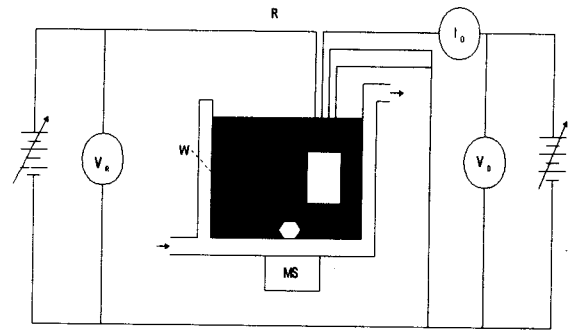


Fig. 1. Schematic diagram of testing circuit with the FET-type pCO₂ sensor.

R : Ag/AgCl reference electrode, S : pCO₂sensor,
M : magnetic bar, W : water jacket,
MS : magnetic stirrer.

(b) Ag 박막과 Si₃N₄와의 부착력이 낮아서 lift-off 공정을 하는 동안에 Si₃N₄ 표면에서 부분적으로 PR과 같이 제거되는 것을 방지하기 위하여 Ag 박막의 glue layer로서 0.15g의 NiCr(8:2, Nilaco)을 열증착기(Varian, nrc 3115)로 증착시간(30초)을 조절하여 약 150Å 두께의 박막을 증착하였다[8].

(c) NiCr/Ag를 형성한 후 positive PR을 제거하였다(Ag; 99.99%, 약 3000Å).

(d) 증착된 Ag막을 500°C furnace에서 약 30분간 열처리한 후 다시 positive-PR을 사용하여 chloridation시킬 창을 만들었다.

(e) 0.1M FeCl₃ 용액에 담구어 노출된 Ag 표면에 AgCl 박막을 형성시켰다.

(f) NiCr/Ag/AgCl를 형성한 후 positive-PR을 제거하였다[9].

2.3. FET형 pCO₂ 센서의 제조

Ag/AgCl 전극이 형성된 pH-ISFET 바탕소자의 gate부위에, 단계적인 실험을 통하여 최종적으로 단점들을 제거하고 사진식각법으로 수화젤 및 기체투과막을 형성한 과정은 다음과 같다.

먼저 친수성 단량체인 HEMA(2.88 g)와 acrylamide(0.50 g)을 H₂O(3.00 g)에 가해 용액을 만들고, 이 용액에 감광성 개시제인 DMPA(0.10 g), 가교제인 MBAA(0.05 g), 점증제인 PVP(0.10 g), 용제인 EG(1.90 g), O₂ quencher인 TED(0.60 g) 및 내부전해질로 0.1M NaCl, NaHCO₃ 염을 가해 수화젤(hydrogel)막 형성용 감광액을 제조하였다. 이 용액 50 mg을 pH-ISFET 바탕소자 위에 적가한 다음 회전도포기(spin coator)를 이용하여 1500 rpm에서 25초간 회전시켜 막을 형성한 후 photo mask를 놓고 UV노광기로 210초간 노광하였다. 노광된 소자는 ethanol/H₂O 현상액으로 비노광 부분을 제거하여(10초) 수화젤막을 형성하였다.

다음으로 기체투과막에 상당하는 부분을 사진식각법으로 형성시키기 위해 UV-oligomer(2.50 g)을 THF(2.50 g)에 용해시키고 이 용액에 DMPA(0.15 g) 및 TED(0.30 g)을 가해 감광액을 제조하였다. 이 용액 50 mg을 수화젤막이 형성된 pH-ISFET 바탕소자위에 적가하고 회전도포기를 이용하여 1200

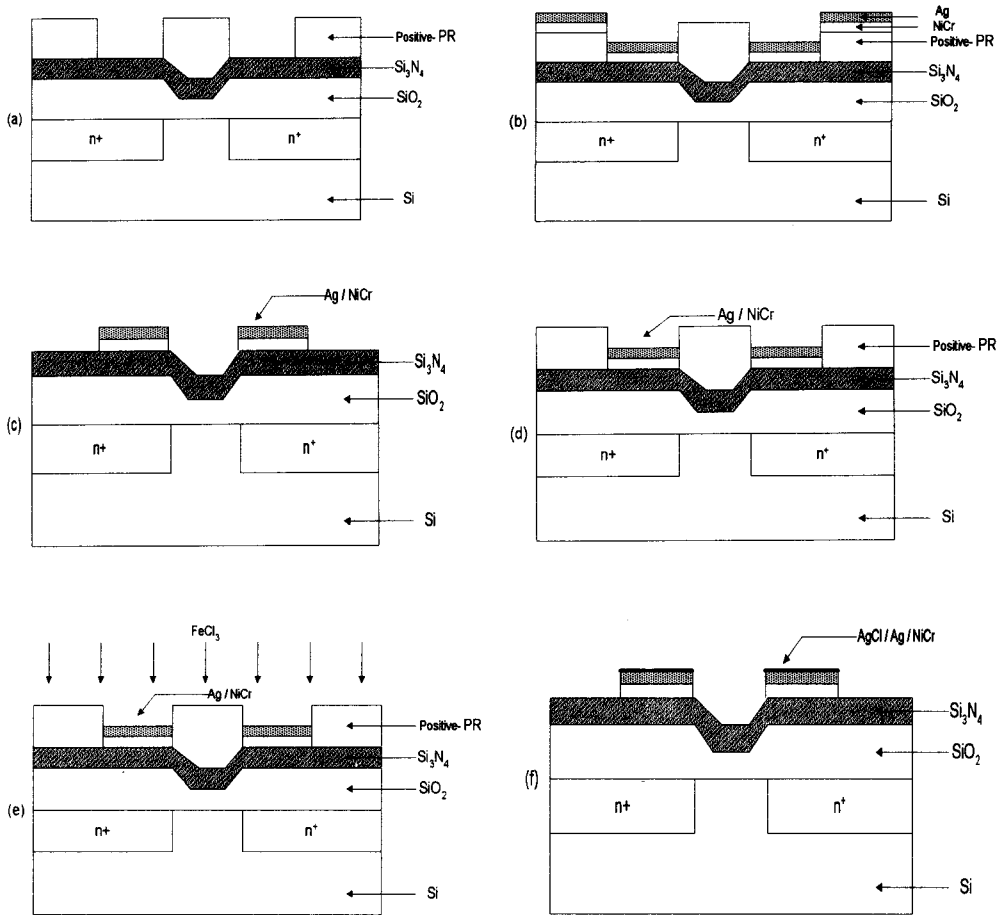


Fig. 2. Fabrication sequence for Ag/AgCl reference electrode on pH-ISFET.

rpm에서 25초간 회전시켜 막을 형성한 후 mask를 놓고 UV노광기로 210초간 노광하였다. 노광된 소자는 toluene 현상액으로 비노광 부분을 제거하여(10초) FET형 pCO₂ 센서를 제조하였으며 그 공정순서(a → c) 및 구조를 Fig. 3에 간단히 나타내었다.

3. 결과 및 고찰

3.1. Ag/AgCl 기준전극의 특성

pH-ISFET의 감지 게이트 주위에 Ag/AgCl 기준전극을 형성하여 열처리조건, chloridation(AgCl화)시간에 따른 Ag/AgCl 기준전극의 특성을 조사하였다. 그리고 pH-ISFET와 Ag/AgCl 기준전극을 내장한 pH-ISFET의 pH 감도를 비교하여 기준전극이 형성되었을 때 pH-ISFET의 특성을 조사하였다.

즉, Ag/AgCl 기준전극의 특성은, Ag막의 열처리조건과 chloridation에 따른 Ag/AgCl의 두께비와 직결되므로 pH-ISFET 바탕소자 위에 집적화된 Ag/AgCl 기준전극의 특성을 NaCl 용액 중의 Cl⁻에 대한 감도로서 조사하였다. 먼저 Ag 막의 열처리 온도에 따른 Cl⁻에 대한 감도를 측정하였으며(Fig. 4) 열처리 온도가 증가함에 따라 감도가 증가함을 알 수 있다. 이것은 열처리에 의해 Ag 막이 다결정질화되어 grain boundary

가 증가하므로 AgCl 로의 chloridation이 효과적으로 일어나기 때문으로 생각된다. 그러나 600℃ 이상의 온도에서는 소자의 전극으로 사용하는 Al이 산화되어 전극으로서 사용이 불가능하였다. 다음으로 열처리된 Ag 막을 FeCl₃ 수용액으로 chloridation 시키는 시간에 따른 Ag/AgCl 전극의 Cl⁻에 대한 감도의 차이를 조사하였으며 chloridation 시간이 40초 정도일때 Cl⁻에 대해 안정된 응답과 비교적 높은 감도를 보였다(Fig. 5).

위의 결과에 따라 열처리 온도 500℃, chloridation 시간을 40초로 하여 형성시킨 Ag/AgCl 전극을 제작하고 각 Cl⁻ 농도 변화에 따른 출력전압의 변화를 알아 보았으며 그 결과 10⁻⁴ ~ 10⁰ mole/l의 Cl⁻ 농도 범위에서의 선형적인 응답과 55.1 mV/pCl⁻의 감도를 보였다(Fig. 6).

이상의 결과로부터 pH-ISFET 바탕소자 위에 상기의 방법으로 제작되어 집적화된 Ag/AgCl 전극은 FET형 pCO₂ 센서의 기준전극으로 충분히 사용 가능함을 알 수 있었으며 다음으로 중합과 동시에 가교가 일어나는 광중합(photo-polymerization)형 감광액을 사용하여 CO₂ 감지용 수화젤막(hydrogel membrane)을 사진식각법으로 일정하게 형성하는 과정에 대해서 조사를 하였다.

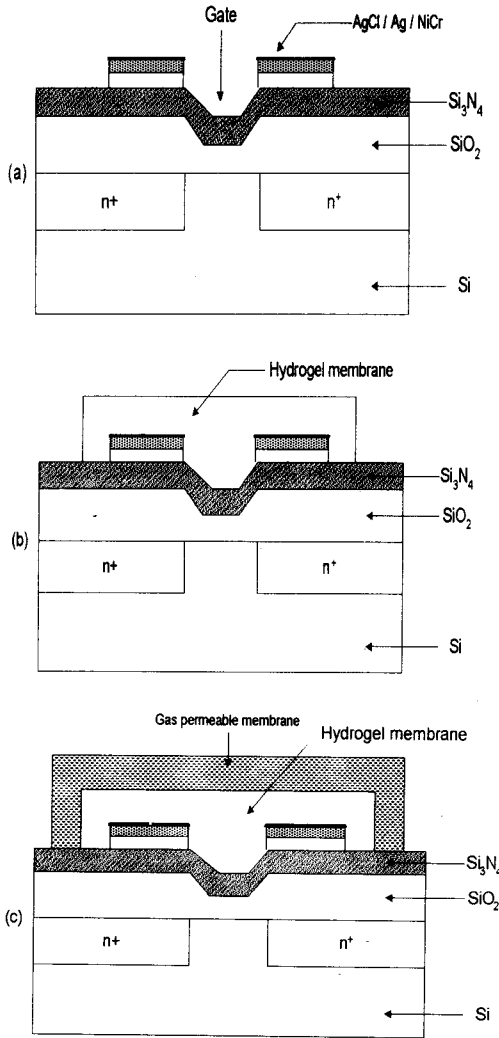


Fig. 3. Fabrication sequence for FET-type pCO₂ sensor device.

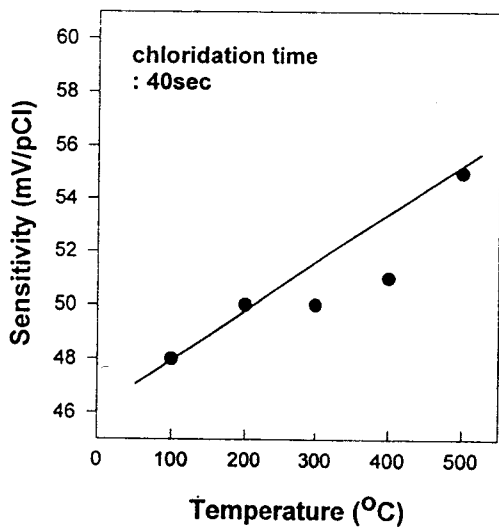


Fig. 4. Sensitivity of Ag/AgCl electrode fabricated on pH-I SFET according to heat-treatment temperature of Ag layer.

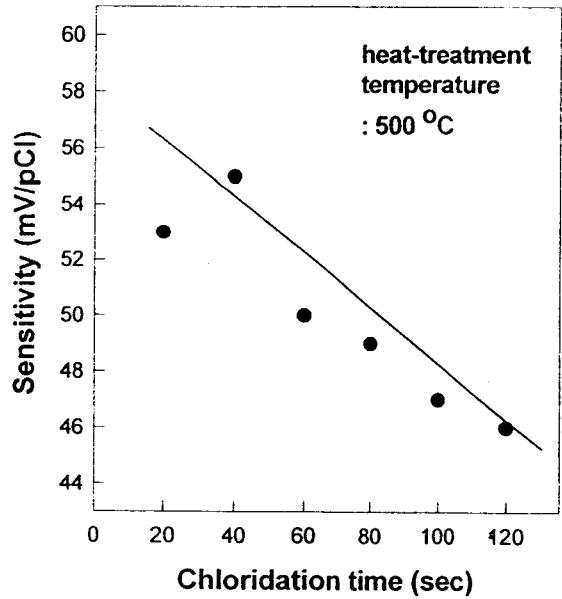


Fig. 5. Sensitivity variation of Ag/AgCl electrode according to chloridation time of Ag layer.

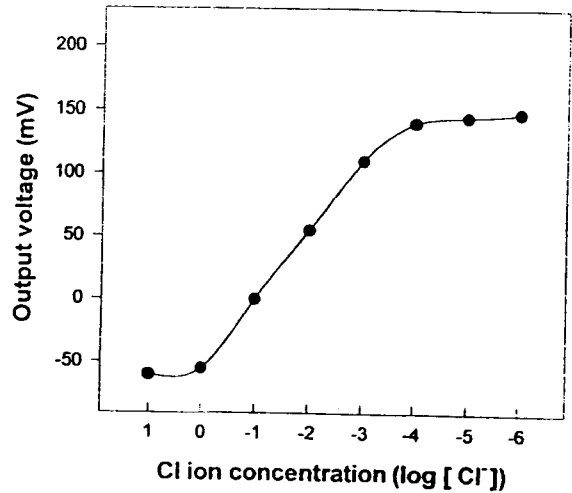


Fig. 6. Output voltage calibration curve of fabricated Ag/AgCl electrode according to Cl⁻ concentration.

3.2. 사진식각법에 의한 수화젤(hydrogel)막의 형성

3.2.1. Polyester(Mylar) film을 이용한 수화젤막의 형성

감광액은 HEMA(2.88 g), 광개시제인 DMPA(0.10 g), 가교제인 MBAA(0.05 g), 점증제인 PVP(0.10 g) 및 용매인 H₂O/EG (3.00 g/1.90 g)와 0.1 M NaHCO₃, NaCl 염으로 구성하였다. 사진식각 공정은 회전도포 속도 1000 rpm(25초)의 조건에서 위 감광액 약 50 mg으로 박막을 형성한 다음 Mylar film을 덮어 공기중의 산소와의 접촉을 차단한 상태에서 노광(120초)하고 ethanol을 용제로 사용하여 현상(40초)하였으며 이렇게 제조된 수화젤막의 사진을 Fig. 7에 나타내었다. 이상의 광 증합형 감광액을 사용한 수화젤막의 사진식각 공정에서는 공기중의 산소(O₂)가 증합금지 작용을 일으키므로 O₂ 차단막으로 Mylar film을 사용했을 때만 수화젤막의 pattern이 형성됨을 알 수

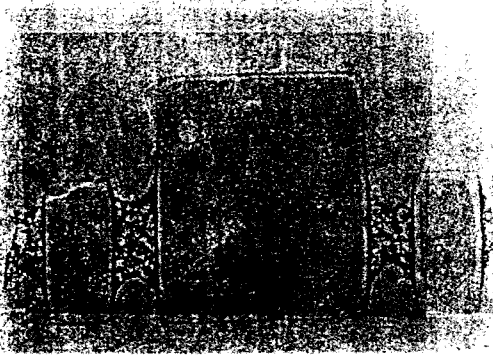


Fig. 7. Micro-photograph of hydrogel membrane pattern with the aid of Mylar film.

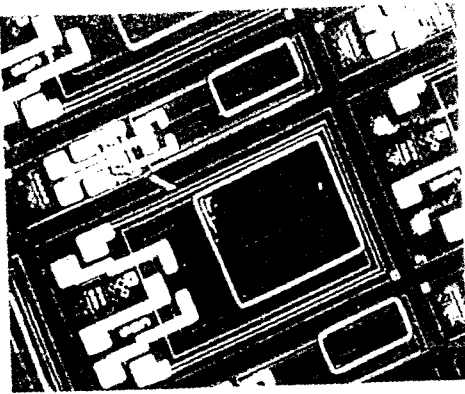


Fig. 8. Photography of hydrogel membrane fabricated by photolithographic process without polyester film (Mylar film).

있었으며 pattern이 얻어진 경우라도 Fig. 7에서 보듯이 경계면이 뚜렷하지 못하였다. 또 사진식각 공정에서 노광 후 현상을 위해서 Mylar film을 수화젤막으로부터 벗겨내어야 하는데 이 과정에서 수화젤막의 표면상태가 아주 불규칙하게 되어 센서의 불안정을 초래하는 문제가 있었다.

3.2.2. O₂ quencher를 포함한 감광액을 이용한 수화젤막의 형성

O₂의 중합금지 작용을 방지하기 위한 Mylar film 사용의 문제점을 개선하기 위해 N,N,N',N'-tetramethyl ethylenediamine (TED)를 O₂ quencher로 사용하여 감광액을 제조하였다. 곧 HEMA(2.88 g), 광개시제인 DMPA(0.10 g), 가교제인 MBAA(0.05 g), 점증제인 PVP(0.10 g) 및 용매인 H₂O/EG(3.00 g/1.90 g)와 0.1 M NaHCO₃, NaCl 염으로 구성된 감광액을 제조한 후 O₂ quencher인 TED(0.1~1.0 g)를 첨가한 다음 충분히 교반하였다. 이 감광액을 사용하여 Mylar film을 사용하지 않고도 회전도포 속도 1500 rpm(25초), 노광 240초, 현상(10초)의 조건에서 요철 및 핀 홀(pin hole)등이 생기지 않고 해상도가 높은 수화젤막의 형성이 가능함을 알 수 있었다(Fig. 8). 또한 O₂ quencher로서 TED의 함량을 변화시켜 가며 사진식각을 할 때 TED의 함량이 약 0.6g에 이르면 깨끗한 pattern을 얻는데 필요한 노광시간이 일정해 짐으로부터 최적 TED의 함량을 결정

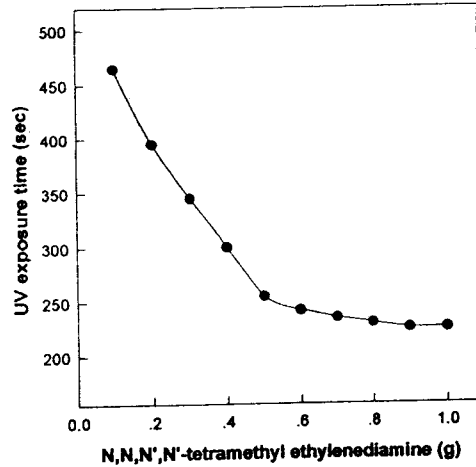


Fig. 9. Change of UV-exposure time with the amount of O₂ quencher.

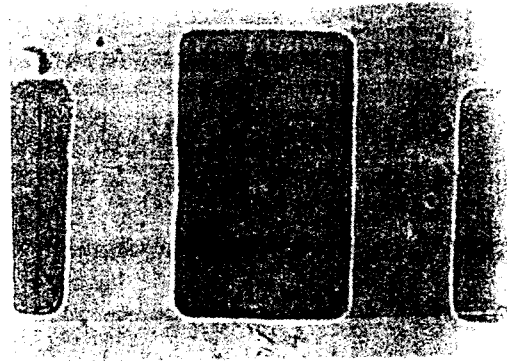


Fig. 10. Photography of hydrogel membrane with HEMA/Acrylamide/O₂ quencher.

할 수 있었다 (Fig. 9).

위와 같은 조건하에서 수화젤막을 사진식각법으로 형성한 다음 UV-oligomer를 이용한 기체투과막 형성용 감광액을 사용하여 수화젤막 위에 기체투과막을 사진식각법으로 형성하여 pCO₂ 센서를 제작하였다. 그러나 이와같이 제조된 FET형 센서의 용존 CO₂ 농도를 달리한 실제 측정실험에서 CO₂에 대한 감도가 32 mV/decade로 비교적 낮게 나타났는데 이것은 수화젤막의 수분 함량이 부족하여 내부 전해질의 활동도가 저하된 것으로 생각되었다. 이와 같이 HEMA를 단독 주성분으로 한 감광액을 사용하여 수화젤막을 형성하는 경우 제조된 센서의 수화젤막 내부의 수분 함량 부족이 문제점이 되며 이를 보완하기 위해 HEMA와 acrylamide를 동시에 포함하는 감광액을 사용하여 친수성을 증가시킨 감광액을 이용하여 실험하였다. 즉 위와 같은 조성비의 감광액에 acrylamide (0.50 g)를 첨가하고 회전도포 속도, 노광, 그리고 현상 조건을 같이 수행한 결과 역시 깨끗한 형상의 수화젤막 pattern이 얻어짐을 관찰하였으며(Fig. 10), 그 위에 기체투과막을 형성하여 pCO₂ 센서를 제조하고 그 특성을 평가하였다.

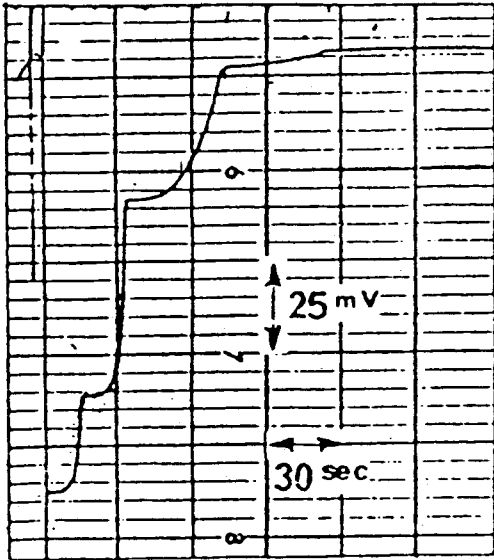


Fig. 11. Output voltage profile of pCO₂ ([CO₂] = 10⁻⁴~10⁰) sensor with urethane acrylate UV-oligomer as a gas permable membrane.

3.3. 사진식각법에 의한 기체투과막의 형성 및 pCO₂ 센서의 특성

기체투과막을 형성한 감광액의 주성분으로는 한화(주)의 urethane acrylate계 (UV-oligomer)를 사용하였는데 이것은 polyisocyanate와 2-hydroxy ethylmetacrylate와 같은 OH 기를 포함한 아크릴레이트 모노머와의 반응에 의해 만들어진 것이다. 감광액의 조성 및 식각공정조건은 2.3에서 기술한 바와 같다.

Fig. 11은 위의 감광액과 형성방법을 이용하여 제조된 기체투과막의 기체투과도를 조사한 것이다. 즉 시판되는 Severinghaus형 전극형 pCO₂ 센서의 하나인 Orion사의 pCO₂ 센서 전극에 사진식각법용 위의 감광액을 film casting하여 제조된 기체투과막을 부착하고, 내부 전해질 용액으로서 0.1M NaHCO₃와 0.1M NaCl용액을 넣은 다음 0.1M citrate buffer용액에 NaHCO₃용액을 첨가하여 측정액 중의 CO₂ 농도를 변화시킬 때(10⁻⁴~10⁰ mole/l) 나타나는 Orion사의 전극형 pCO₂ 센서의 감응 특성을 조사한 것으로서, 감응 기울기가 58.0 mV/decade로 높을 뿐 아니라 넓은 pCO₂ 범위에 적용할 수 있음을 보여 주므로 urethane acrylate계 UV-oligomer를 주성분으로 한 기체투과막의 CO₂ 투과 특성이 센서제조에 적합함을 알 수 있었다.

이상과 같이 HEMA/acrylamide를 포함하는 감광액을 사용해 사진식각법으로 수화젤막을 만들고 그 위에 UV-oligomer를 주성분으로 하는 감광액을 사용하여 기체투과막을 사진식각법으로 형성하여 제조된 이중막 구조(Fig. 12) FET형 pCO₂ 센서의 감정곡선(calibration curve)은 Fig. 13에 나타내었으며 제조된 FET형 pCO₂ 센서는 Fig. 14에서와 같이 H⁺ ion의 농도변화(4 ≤ pH ≤ 7)에는 거의 감응을 보이지 않았고 용존 CO₂ 농도 변화에 대해서는 10⁻³~10⁰ mole/l 농도범위에서 직선성을 나타내었으며 감응기울기도 약 51 ± 0.5 mV/decade로서 수화젤 막 내부의 수분함량 문제가 개선된 우수한 감응특성을 나

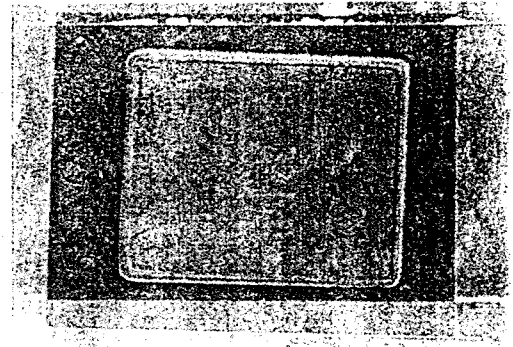


Fig. 12. Photography of double layered membrane by photolithographic method with HEMA/Acrylamide/O₂ quencher for hydrogel membrane and UV-oligomer for gas permable membrane.

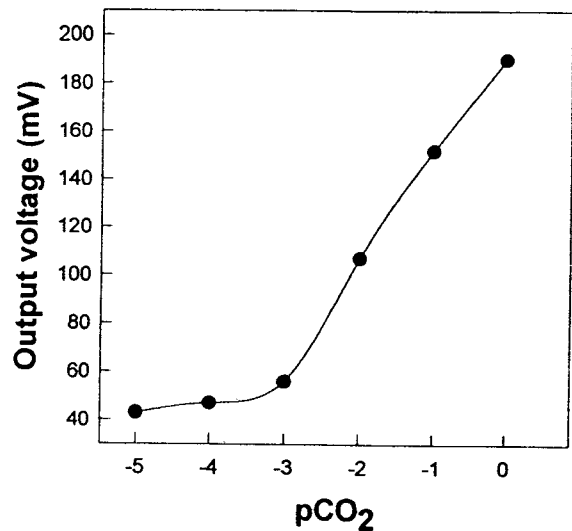


Fig. 13. Calibration curve of a FET type pCO₂ sensor by photolithographic method (25°C, pH=4.5, 0.2M citric buffer).

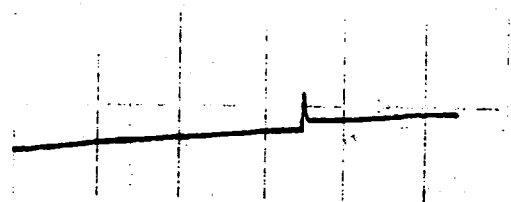


Fig. 14. Output voltage-time profile of FET-type pCO₂ sensor(pH 7 → 4).

타내었다.

4. 결 론

감광성 고분자를 감지막 재료로 한 FET형 마이크로 CO₂ 센서소자를 사진식각법으로 제작하는 것이 가능하였다. 즉, 바탕

소자인 pH-ISFET gate 위에 먼저 Ag/AgCl 기준전극을 형성하고 수화젤 및 기체투과막의 순서로 감지막을 형성하였으며 광중합 감광성 고분자로서 2-hydroxy methacrylate, acrylamide 단량체를 수화젤막 재료로, polyurethane acrylate oligomer를 기체투과막 재료로 사용하였고, 막 형성시 산소(O₂)에 의한 중합 금지작용은 N,N,N',N'-tetramethyl ethylenediamine을 O₂ quencher로 사용함으로써 광중합형 고분자가 사진식각공정에 적합함을 알 수 있었다. 또한 사진식각법으로 제조된 FET형 pCO₂ 센서는 농도 10⁻³~10⁰ mole/l 범위에서 좋은 직선성을 나타내었다.

본 연구 결과는 반도체 공정을 이용하는 각종 소형 화학 센서소자의 경제적인 대량 생산에 응용되어질 것으로 기대되진다. 또한, 소자자체의 혈액 응고성, 구성 물질들의 새어나옴 등과 관련한 생체 적합성 개선에 대한 연구와 더불어 임상 의학분야에서 중요한 지침이 되는 혈액 중의 H⁺, Na⁺, K⁺, Ca²⁺ 이온들의 측정과 동시에 용존 CO₂의 양을 검출할 수 있는 센서 개발 관련 연구를 병행하고 있으며 이를 위한 소자의 개발에 매우 유용한 제작방법이라고 생각된다.

참 고 문 헌

1. R. W. Stow, R. F. Baer, and B. F. Randall, *Arch. Phys. Med.*, **38**, 646(1957).
2. J. W. Severinghaus and A. F. Bradley, *J. Appl. Physiol.*, **13**, 515(1958).
3. K. Tsukada, Y. Miyahara, Y. Shibata, and H. Miyagi, *Sensors and Actuators B*, **2**, 291(1990).
4. W. Schelter, W. Gumbrecht, and B. Montag, *Sensors and Actuators B*, **6**, 91(1992).
5. Ph. Arquint, A. van den Berg, B. H. van der Schoot, and N. F. de Rooij, *Sensors and Actuators B*, **13**, 340(1993).
6. S. Wolf and R. N. Tauber, *Silicon Processing for the VLSI Era*, Lattice Press, **1**, 421(1986).
7. M. Hatzatcis, B. J. Canavello, and J. M. Chau, *IBM J. Res. Develop.*, **24**, 452(1980).
8. S. J. Schepel, N. F. de Rooij, G. T. Coning, B. Oeseburg, and W. G. Zijlstra, *Med. Biol. Eng. Comput.* **22**, 8(1984).
9. S. Gernet, M. Koudelka and N. F. De Rooij, *Sensors and Actuators*, **18**, 59(1989).