

Annual Report 2023 Cryogenic Research Center The University of Tokyo

技術ノート

ミリケルビン抵抗温度センサの簡単な自作法

pp. 100–106

東京大学 低温科学研究センター
福山 寛



CRC Annual Report 2023, Volume 15 (October, 2024)
Cryogenic Research Center, The University of Tokyo

技術ノート

ミリケルビン抵抗温度センサの簡単な自作法

低温科学研究センター・研究開発部門

福山 寛

1. はじめに

近年、量子コンピュータ開発を中心とする量子技術研究が活発となり、市販の ^3He - ^4He 希釈冷凍機の自動運転の信頼性向上も相まって、物性研究以外の分野の研究者が 1 K 以下のミリケルビン (mK) 温度域の実験を行う機会が急速に増えている。当センターが運営する極低温量子プラットフォーム[1]の希釈冷凍機も、素粒子物理学や宇宙物理学の研究者が共同利用しており、企業の R&D 利用も始まろうとしている。こうした研究者から「沢山の温度センサを使いたいが、共同利用できるセンサ数では足りない」、「単なる温度モニタなので 10%程度の精度で测温できれば良いが、市販の温度センサは未校正品でもかなり値が張る」といった相談を受けることがある。筆者はそうした場合、mK 実験技術のバイブルとも言える教科書[2]を紹介しつつ、「この教科書にも書かれている通り、実用的な性能をもつ抵抗温度センサは自作できますよ」と助言している。ただ、新規ユーザーにとって mK は未体験ゾーンであり、自作には躊躇する向きもある。そこで、1 K から 30 mK くらいまでの希釈冷凍機温度域をカバーする抵抗温度センサの簡単な自作法を本稿で紹介することにした。これによって、少しでもそのハードルが下がれば幸いである。

抵抗温度計は、物質の電気抵抗の温度変化を利用した二次温度計で、最も手軽な低温温度計である。正の温度係数をもつ白金や白金合金の抵抗素子は、1 K 以下では温度変化が小さくなり過ぎて、mK 温度計には使えない。逆に低温になるほど急速に抵抗が増加する負の温度係数をもつ抵抗体を用いるのが普通で、例えば Ge 半導体、カーボンコンポジション抵抗器（以下、カーボン抵抗）、酸化ルテニウム (RuO_2) 厚膜、窒化ジルコニウム系薄膜などがある[2]。このうち RuO_2 厚膜のセンサには、今日のエレクトロニクス用固定抵抗器の *de facto standard* とも言える表面実装形のメタルグレーズ厚膜チップ抵抗器をそのまま使うことができ、自作には最も適している。

2. RuO_2 厚膜チップ抵抗温度センサの自作手順

RuO_2 厚膜チップ抵抗器（以下、チップ抵抗器）の抵抗素子は、直径が数十 nm の RuO_2 微粒子とガラス粉体を適当な割合で混合してアルミナ基板（厚みは約 0.5 mm）上にスクリーン印刷し、高温で焼成した厚さ 10~20 μm の厚膜である。抵抗値は 1 Ω から 10 M Ω 程度まで、大きさは 0.3 mm から 5 mm 角くらいまでさまざまなバリエーションがある。単価は購入数量にも依るが数円から 100 円程度と安価な大量生産品である。こうした市販のチップ抵抗器が mK 域で有用な抵抗温度センサとなることは、日本の研究グループが 1984 年にはじめて報告した[3]。それ以前は、後述するようにカーボン抵抗器が主流であったが、 RuO_2 厚膜チップ抵抗器はより再現性が高く、磁気抵抗変化も小さいなど優れた面が多いため、2000 年前後から急速に普及した。現在市販されている希釈冷凍機の 100 mK 以下の温度計は、ほとんど全て RuO_2 センサを使っている。

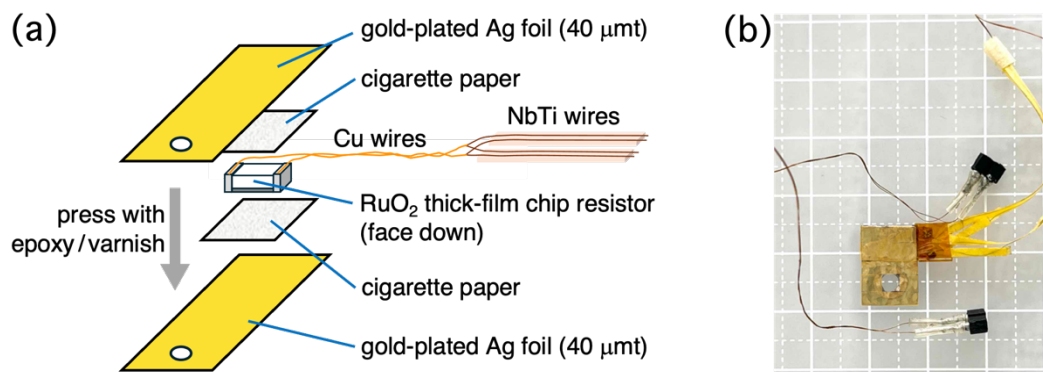


図 1. RuO₂厚膜チップ抵抗器を利用した mK 抵抗温度センサの自作。(a)2 枚の金属フォイルでチップを挟み込む“ラビオリ”タイプの製法。(b)完成写真の一例。こちらは 1 枚の金属フォイルでチップを巻き込む“春巻き”タイプ。

これまで少なくとも 8 社の国内外の製造メーカーによる量産品チップ抵抗器が mK 温度センサとして使えることが報告されている[2,4]。筆者の周辺で長年にわたり国産チップ抵抗器[5,6]を使った抵抗温度センサを様々に自作してきた経験[7,8]を集約して、以下に具体的な製作手順を紹介する(図 1 参照)。

1. チップ抵抗器は製品のまま特に追加工の必要はない。はじめにビニール袋にヘリウムガスとともに封じて、液体窒素に浸漬し室温に戻すという熱サイクルを 10~20 回繰り返しておく。この aging によって温度センサとしての再現性が向上することが知られている[2]。なお、熱サイクルの前に、RuO₂厚膜側の面(おもて面:厚さ 10~15 μm のガラス膜で保護されている)をラッピングフィルムで研磨して平滑化したり、熱応答時間を短くするためアルミナ基板側の面(うら面)をサンドペーパーで削って薄くするなどの加工を施しても構わない。
2. チップ抵抗器の両端廻りにあらかじめハンダメッキされている電極のチップ「うら面」または「側面」に、線径 0.1~0.2 mm の絶縁被覆付の銅線をリード線としてハンダ付けする。
3. 図 1 に示すように、リード線を付けたチップ抵抗器全体を上下から覆うための金属フォイルを用意しておく。金属フォイルは、適度な柔軟性と高い熱伝導性をもつ必要があるため、厚さが 0.05~0.1 mm のできるだけ高純度(4N 以上)の銀または銅フォイルとする。高純度金属を適切な条件下で焼鈍する設備や委託先があれば金属フォイルは焼鈍した方が望ましいが、高純度であれば必須ではない。ただし、全面を金メッキしておくことは重要である[9]。金属フォイルでチップ抵抗器を包み込む方式は、図 1(a)のように 2 枚の金属フォイルで挟む“ラビオリ”型でも良いし、図 1(b)の写真のように 1 枚の長いフォイルでロールする“春巻き”型でもよい。以下ではラビオリ型で説明する。大切なことは、チップ抵抗器全体を金属で完全に覆うことで、rf ノイズあるいは輻射由来の自己発熱を低減できる。
4. 上下から金属フォイルでチップ抵抗器を挟む際、電気絶縁性を担保するため、間にタバコ紙(厚みは 2~3 μm)を挿入し、できるだけ少量の接着剤で固定する。接着には GE7031 ワニス [10]かエポキシ樹脂 (Stycast 2850FT [11]あるいは Stycast 1266 [12])を使う。チップおもて面と金属フォイルの間の熱伝導度はセンサの性能を左右するので、接着剤の量を最小限にとどめて絶縁層はできるだけ薄くし、挟んだ後、上から指で適度な圧力を加える[13]。一方、

2枚の金属フォイルの外周付近は、電磁シールドのため互いによく金属接触させたいので、接着剤がそこまではみ出さないように気を付けて、より大きな力で圧着する。圧着の際はリード線の絶縁被覆を痛めないよう注意する。

5. 2本の銅リード線は金属フォイルのすぐ外で絶縁被覆付の NbTi モノフィラメント超伝導線 (CuNi クラッド付き、外径は 0.1 mm 程度) [14] にハンダ付けし、超伝導の 4 端子リード線に変換する。リード線はツイストペアあるいは平行フィーダーにしてノイズを拾いにくくする (図 1(b) は紙テープで挟んだ平行フィーダーの例)。その先は、直近の温度ステージ (例えば希釈冷凍機の混合器など) で銅ボビンに巻き付けワニス固定して熱アンカーする。熱アンカーの方法は、直径 10 mm くらいの銅ボビンにリード線を長さ 10 cm 以上巻き付けてワニスで固定する [15]。CuNi ではなく銅クラッドの超伝導線でも代用できるが、いずれの場合も、クラッドを伝導する熱流入を防ぐため、途中で長さ数 cm 以上にわたって CuNi や銅を希硝酸で溶かして除去する (ハンダ付けのため両端のクラッドは残しておく)。ただし、熱アンカーを置く温度ステージそれ自体の測温をしたい場合は、超伝導線に変換せず全てを銅線で製作しても良い。ただ、この場合であっても、それより一段高い温度ステージまでの間のリード線を超伝導線にして熱流入を防ぐことが肝要である。

3. 測定上の注意点

以上の手順で製作した抵抗センサは交流抵抗ブリッジで 4 端子計測する。mK になると素子と被測温体の間の熱抵抗 (R_T) が非常に大きくなるので、素子自体にわずかな熱 (\dot{Q}) が発生しても、両者に大きな温度差が生じてしまうので注意が必要である。 R_T の主体は絶縁体や異種物質間の界面熱抵抗で、低温で $R_T \propto T^{-3}$ のように急増する。典型的には、温度 T (K) のとき \dot{Q} (W) は $10^{-6}T^4$ 以下に抑える必要があると言われている [2]。つまり、30 mK では pW レベルまで発熱・入熱を抑えなければならない。 \dot{Q} には大別して (i) 測定電流によるジュール発熱、(ii) 冷凍機の高温部からリード線を伝導して流入する熱、(iii) rf 発熱の 3 種類ある。最後の rf 発熱は、素子とリード線からなる伝送系がアンテナとなってクラオスラット内外から高周波を引き入れたり、この伝送系が高温部からの黒体輻射を直接受けて吸熱する成分である。これらは実験室の環境や実験装置の詳細でも変わるので評価や対策が難しく、一般的には各リード線に室温あるいは混合器ステージにローパスフィルタを挿入する対策が推奨されている [2]。ただ、ブリッジ励起電圧を変えても抵抗値が変化しない範囲の小電力で抵抗測定し ((i) 対策)、前節で説明した方法でセンサを製作すれば ((ii) 対策)、ローパスフィルタを全く設置しなくてもこの自作センサは 30 mK 程度まで測温可能である。なお、センサ抵抗が低温でおよそ 100 k Ω を越えると信頼のおける計測が難しくなるので、チップを選択するときは留意したい。

本稿の趣旨からは少し外れるが、センサを納める金属容器内部に特殊な rf フィルタ兼熱アンカー (rf 吸収体) を組み込めば、ここで自作法を紹介した同じメーカーのチップ抵抗器を使って 10 mK 以下の計測も可能となることが最近報告されている [16]。

4. 自作した RuO₂ 抵抗温度センサの性能

自作した RuO₂ 抵抗温度センサを他の校正済み温度計に対して校正した結果を図 2 (a) に示す。図 2 (b) はそのデータから求めた無次元感度 $(T/R)|dR/dT|$ である。緑色の実線が ALPS 社製 470 Ω

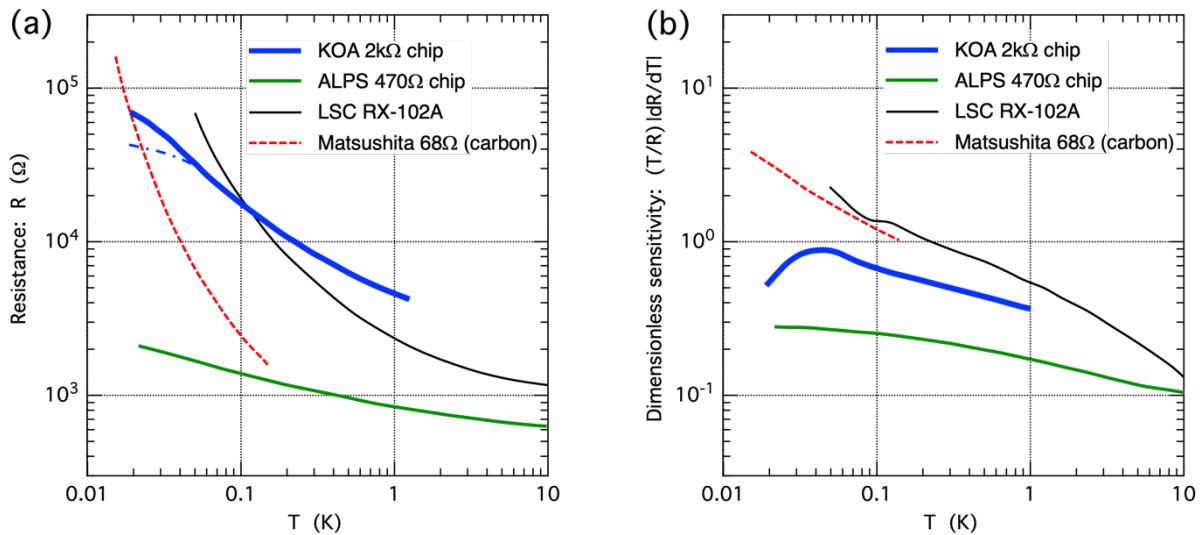


図2. RuO₂厚膜抵抗温度センサの(a)電気抵抗の測定結果とそれから求めた(b)無次元感度。緑色実線：ALPS社製470 Ω チップ[5]を使った自作センサのデータ[7]、青色太線：KOA社製2k Ω チップ[6]を使った自作センサのデータ[8]、黒色細線：Lake Shore Cryotronics社製RX-102Aセンサ[17]のカタログデータ。赤色破線は、比較のためプロットしたMatsushita-68 Ω 抵抗器[20]を使った自作のカーボン抵抗温度センサのデータ[21]。

チップ[5]を使ったセンサの測定データ[7]で、青色の太線がKOA社製2k Ω チップ[6]を使ったセンサの測定データ[8]である。比較のためLake Shore Cryotronics社製のRX-102Aセンサ[17]のカタログ値も黒色の細線で示す（このセンサの最低動作温度は50 mK）。これらの図から、自作センサでもチップ抵抗器を選べば市販センサの半分程度の感度を持ち、20~30 mKまで十分実用に耐えることがわかる。参考までに、KOA-2k Ω チップを包んだ銀フォイルに金メッキを施す前に測定したデータを図2(a)に青色一点鎖線で示した。この場合、rfノイズに起因する自己発熱のため50 mK以下で抵抗の飽和傾向が顕著である。飽和領域では、感度が低下し、環境変化の影響を受けて再現性が落ちるので信頼できる測温はできない。しかし、金メッキによって飽和現象はかなり改善され、30 mK近くまで使用可能範囲が伸びることが分かる。図示していないが、ALPS-470 Ω チップでも、金属フォイルの密閉性を上げることで同様の変化が確認されている。いずれの自作センサのデータも、地下2階のシールドルームのない実験室に設置した同じ希釈冷凍機を使って計測し、リード線にローパスフィルタは設置していない。

これらの温度センサの R - T 関係式すなわち温度校正式は次式のような多項式で近似するのが一般的である。

$$\log R = \sum_{i=0}^n a_i (\log T)^i \quad (1)$$

次数はデータ点数にもよるが、 $n = 4$ 程度で大抵よく fitting できる。こうした経験式の他に、RuO₂厚膜センサに限らず、低温で大きい負の温度係数をもつタイプの抵抗温度センサの多くは、1 K以下の低温で

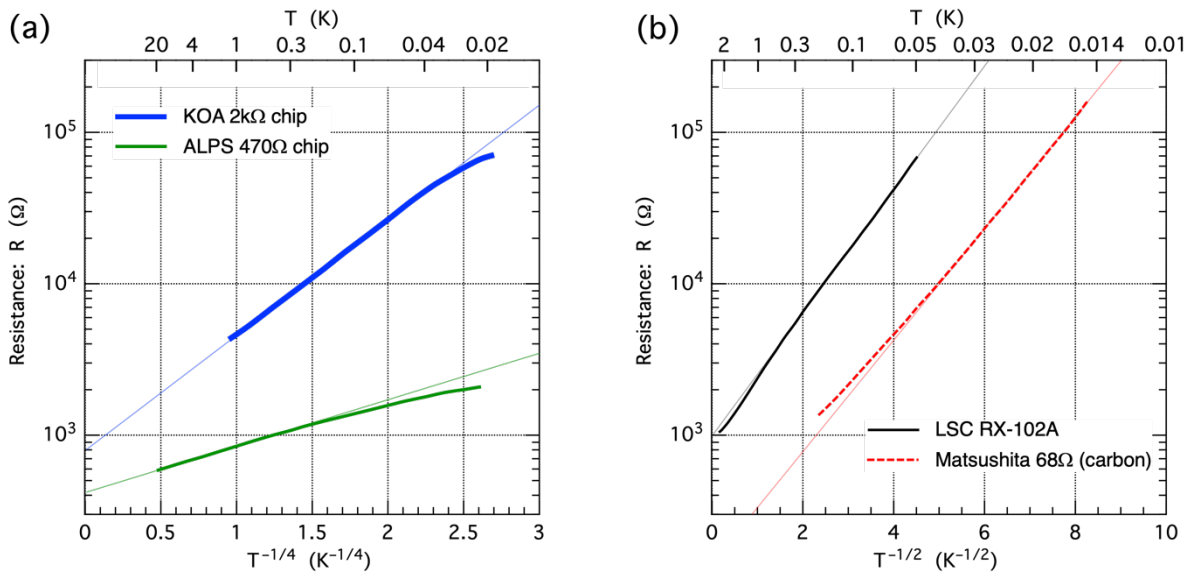


図3. 図2(a)に示した RuO_2 厚膜抵抗温度センサの電気抵抗を、式(2)に基づいて、横軸を (a) $T^{-1/4}$ と (b) $T^{-1/2}$ の関数として再プロットした図。各データ線の色や太さは図2と同じ。

$$R = R_0 \exp(T_0/T)^\alpha, \quad 1/4 \leq \alpha \leq 1/2 \quad (2)$$

の温度依存性を示すことが知られている。式(2)で $\alpha = 1/4$ は、アモルファス半導体中の不純物準位間の hopping 伝導を記述する Mott の variable range hopping (VRH) モデル[18]に対応する。抵抗温度素子の場合、粒径や配置に分布をもつ金属微粒子が不純物準位に相当し、フェルミ準位近傍の状態密度は一定と考える。一方、式(2)で $\alpha = 1/2$ は、各微粒子の帯電エネルギーを考慮して状態密度にソフトなクーロンギャップが開いた場合の VRH モデルに対応すると考えられている (ES-VRH モデル[19])。図3(a)に示すように、自作センサに使った2社のチップ抵抗器[5,6]は概ね $\alpha = 1/4$ の温度依存性を示す。一方、図3(b)に示すように市販の温度センサ[17]は $\alpha = 1/2$ のタイプである。このように、係数 α そして T_0 はメーカーあるいは型番(室温抵抗値)によって異なり、 $1/4$ と $1/2$ の中間の指数を示す場合もある。また、一つの素子が温度域によって $\alpha = 1/4$ から $1/2$ へ移り変わることもある。こうした違いは、 RuO_2 とガラスの成分比やそれらの粒径が決めているようである。いずれにせよ、低温伝導はバルク RuO_2 の金属的な性質ではなく、 RuO_2 微粒子間あるいはそのクラスター間のホッピング伝導が支配している。

5. 自作カーボン抵抗温度センサについて

図2と図3には、国産のカーボン抵抗器[20]を使って自作したセンサのデータ[21]も参考までに赤色の破線で示した。mK 温度計として利用できるエレクトロニクス用カーボン抵抗器[2]は今日ではほとんど入手困難になってしまったが[22]、50 mK 以下の温度域に限れば、 RuO_2 抵抗センサより感度が高く熱応答時間も短いという優れた特性をもつ。カーボン抵抗器の素子部は、カーボンとフェノール系のバインダーの混合粉体を高温焼成したカーボンコンジットなので、低温伝導特性が RuO_2 厚膜素子と似た振る舞いになることは容易に想像がつく。実際、図3(b)に示す

ように、Matsushita-68 Ω 抵抗器は $\alpha = 1/2$ の依存性を示す。なお、このカーボン抵抗センサの場合は、室温部に10 kHz程度のローパスフィルタを設置して計測した。

カーボン抵抗センサの自作法はRuO₂チップ抵抗器と基本的に同じであるが、違いは手順1で必ず円筒形抵抗器をサンドペーパーで研磨して厚みが0.6 mm程度の直方体になるまで削る点である。厚みを0.3 mmまで削って既設のリード線(直径0.4 mm)の代わりに自分でリード線を取り付ければ、熱応答時間を10 mKでも100秒という現実的な長さにできることが報告されている[23]。RuO₂抵抗センサの10 mKでの熱応答時間は短いものでも1000秒なので、この温度域まで抵抗温度計を使って比熱測定したい場合は、カーボン抵抗センサを自作する必要がある[21]。

6. おわりに

自作センサであれ市販センサであれ、抵抗温度センサを使えば手軽に30~50 mKまでの希釈冷凍機温度の測温が可能である。しかし、それより低温になると、素子と外界との間の熱抵抗が急速に大きくなるため、特別にノイズ対策を施したセンサや実験環境がないと、抵抗温度計では信頼できる測温は難しい。ではどうやって希釈冷凍機メーカーは10 mK以下の最低温度を保証できているかと言えば、より高性能なしかしあまり簡便とは言えないmK/サブmK温度計がすでに多数開発されており[2]、暫定版ではあるが0.9 mKまでの国際温度スケールも公表されているからである[24]。こうした背景のもと、抵抗温度センサの信頼性をより低温まで拡張する技術開発は今後も必要であろう。また、rfノイズに弱い性質を逆手にとって、10 mKで10 fWレベルの発熱や入熱を関知できる鋭敏な電磁ノイズ検出器としての使い方もありそうである。

本稿で紹介した内容は、筆者が本学理学系研究科で主宰していた研究室において松本洋介氏、中村祥子氏、宇佐美潤氏が大学院生として進めた研究に負うところが大きい。この場を借りてお礼申し上げる。また、当センターの戸田亮氏には日頃の有益な議論に感謝します。

参考文献

- [1] 東京大学低温科学研究センター・極低温量子プラットフォーム：
<https://www.crc.u-tokyo.ac.jp/FSI/>.
- [2] F. Pobell, Matter and Methods at Low Temperatures, 3rd edn. (Springer, Berlin, 2007).
- [3] H. Doi, Y. Narahara, Y. Oda, and H. Nagano, Proceedings of the 17th International Conference on Low Temperature Physics LT-17, 405 (1984).
- [4] 東京大学・橋高研究室ウェブページ：
<https://park.itc.u-tokyo.ac.jp/kittaka/contents/others/thermo/>.
- [5] RuO₂ thick-film chip resistor (470 Ω), ALPS Electric Co., Ltd.; 生産中止になって久しい。
- [6] RuO₂ thick-film chip resistor, RK73B1ETTP202J (2 k Ω , 0.1 W), KOA Corp.
- [7] 中村祥子, 東京大学・福山寛研究室ミーティング発表資料 (2013年6月18日) .
- [8] Jun Usami, PhD thesis (Univ. of Tokyo, 2022).
- [9] 時間の経過とともに銀の表面は硫化し銅の表面は酸化してしまうので、金属フィルムの表面は金メッキすることを強く勧める。金メッキの際は、装飾品のようにNiの下地メッキを施してはならない(界面熱抵抗が増してしまう)。下地メッキ(ストライクメッキ)にも金を用いる。最終的なメッキの厚みは、センサの着脱頻度が高い場合、1 μm 以上は欲しい。

- [10] GE7031 varnish ; 代理店 : (株)アクシス.
- [11] LOCTITE STYCAST 2850FT, Henkel Adhesive Technologies (旧名 Stycast 2850FT, Emerson & Cuming Inc.).
- [12] LOCTITE STYCAST 1266J, Henkel Adhesive Technologies (旧名 Stycast 1266, Emerson & Cuming Inc.) ; 代理店 : (株)アクシス.
- [13] 接着剤は文献[10–12]のどれを使ってもよいが、個人的には熱接触が重要なチップ抵抗のおもて面の接着には GE7031 ワニスを使い、チップ全体を金属フォイル内で機械的にしっかり固定する部分には Stycast 2850FT を使いたい。
- [14] Mono filamentary fine NbTi wire, type SW-M or T48B-M, Supercon Inc.
- [15] 市販の温度センサには、銅リード線を銅製のセンサケース自身に巻き付けて熱アンカーが取られている例がある。その目的は、素子と金属ケースとの熱接触を助けること、高温部からのリード線経路の伝導熱を低減することの二つであろう。ただ、詳細は省くが、本稿で紹介する構造のセンサには必ずしもこの種の熱アンカーは必要なく、計測結果もそれを示している。
- [16] S. A. Myers, H. Li, and G. A. Csáthy, *Cryogenics* **119**, 103367 (2021).
- [17] RX-102A, Lake Shore Cryotronics, Inc.
- [18] N. F. Mott, *Phil. Mag.* **19**, 835 (1969).
- [19] A. L. Efros and B. I. Shklovskii, *J. Phys. C* **8**, L49 (1975).
- [20] Carbon composition resistor (68 Ω , 1/8 W), Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.
- [21] Yosuke Matsumoto, PhD thesis (Univ. of Tokyo, 2004).
- [22] 文献[23]で使用された Ohmite Manufacturing 社のカーボン抵抗器もすでに製造中止になっているが、本稿執筆時点で一部のオンラインショップではまだ在庫品が入手可能なようである。また、筆者は故檜原良正氏（筑波大学名誉教授）から Allen–Bradley 社、Speer 社、Matsushita 社の各種カーボン抵抗器を譲っていただき保管しているので、興味のある方はご連絡いただきたい。
- [23] N. Samkharadze, A. Kumar, and G. A. Csáthy, *J. Low Temp. Phys.* **160**, 246 (2010).
- [24] R. L. Rusby et al., *J. Low Temp. Phys.* **126**, 633 (2002).