

表面温度測定用薄膜抵抗温度センサーの製作と 滴状凝縮実験への応用

(昭和63年11月30日 原稿受付)

設計生産工学科	鶴	田	隆	治
東京大学工学部	富	樫	盛	典
九工大大学院機械工学専攻	白	濱	正	幸
設計生産工学科	増	岡	隆	士

Fabrication of Thin Film Resistance Thermometer and Application to the Experiment of Dropwise Condensation

by Takaharu TSURUTA
Sigenori TOGASHI
Masayuki SHIRAHAMA
Takashi MASUOKA

Abstract

Thin-film resistance thermometers have been fabricated for the accurate determination of surface temperatures without affecting the heat transfer phenomena. Quartz glass, stainless steel and carbon steel were employed as the substrate, and the surface thermometers were produced using microelectronic thin film technology. The resistor layer of the devices was made of $0.5\mu\text{m}$ thick aluminum forming a meandering pattern to measure the surface averaged temperatures. The sensor calibration shows that the resistance is in proportion to temperature and it is found that the thin-film resistance thermometers can monitor the surface averaged temperature with an accuracy of $\pm 0.12\text{K}$. An application to experiments involving dropwise condensation of low pressure steam is considered in detail.

1. はじめに

固体表面温度を正確に測定することは熱伝達現象を把握する上で大変重要である。一般には、固体内部に数本の熱電対を埋め込み、熱伝導問題から表面温度を推定する方法が広く用いられている。この方法によれば、表面における伝熱現象を乱すことはなく、また、定常状態の測定には大変簡便な方法となるが、固体の熱伝導率が小さくなると誤差が大きくなり、高い精度を要求する場合には表面温度を直接測定することが必要となる。直接測定の方法には、熱電対やサーミスタ等のセンサー類を表面にはりつける接触式と、放射温度計や色温度計等に代

表される非接触式の二つの方式がある。測定対象に与える影響が少ないという点では非接触式が優れているが、検出精度の面では十分とはいえないのが現状である。最近では、感温液晶を伝熱面に塗布し、その色の変化から十分な精度で温度分布を解析する技術が進展しているが、色の分布を映像として可視化記録する必要から、沸騰や蒸発など伝熱面の観察の障害となる現象には利用することができない。

そこで本研究では、センサー自身の検出精度が高いという接触式の利点を生かし、測定対象に与える影響を極力少なくする目的で、薄膜抵抗温度センサーを製作することにした。従来の接触式の感温部は、境界層の厚みや

気泡、液滴の代表スケールに比べて十分には小さくないため、伝熱現象に影響を与え、また熱容量が大きく必要な応答速度がえられないという短所があるが、マイクロオーダーの極めて薄い感温素子を取り付けてそれらの影響を低減しようとするものである。ここでは、面平均温度を直接測定するための薄膜抵抗温度センサーを伝熱面上に形成し、温度-抵抗特性を検討し、これを滴状凝縮実験に応用して凝縮表面温度の挙動をとらえている。なお、薄膜抵抗温度センサーを滴状凝縮熱伝達実験に使用したこれまでの報告として、線幅 $500\mu\text{m}$ 、膜厚 $0.1\mu\text{m}$ のチタニウムを素子とした Hannemann-Mikic の研究¹⁾、線幅 $200\mu\text{m}$ 、膜厚 $1\mu\text{m}$ のニッケル素子による Nagata-Tanasawa の研究²⁾がある。

2. 薄膜抵抗温度センサー

2.1 製作方法

薄膜抵抗温度センサーを形成する際の基板となる伝熱面材料は、滴状凝縮実験への応用を考慮して熱伝導率が異なる石英ガラス、ステンレス鋼 (SUS304) および炭素鋼 (SS41) の3種類とした。これらの材料は、厚さ 1.5mm 、直径 19.5mm の円板状に加工され、その一端面を石英ガラスについては光学研磨、金属材料については鏡面仕上げを行った後、アルミニウムを測温抵抗体とした薄膜抵抗温度センサーを形成する。

図1にアルミニウム抵抗体のパターン形状ならびにセンサーの膜構造を示す。これは、比較的広い面積を覆うセンサーを形成することによって、伝熱面の面平均温度を直接検出しようとするもので、そのために伝熱面のほ

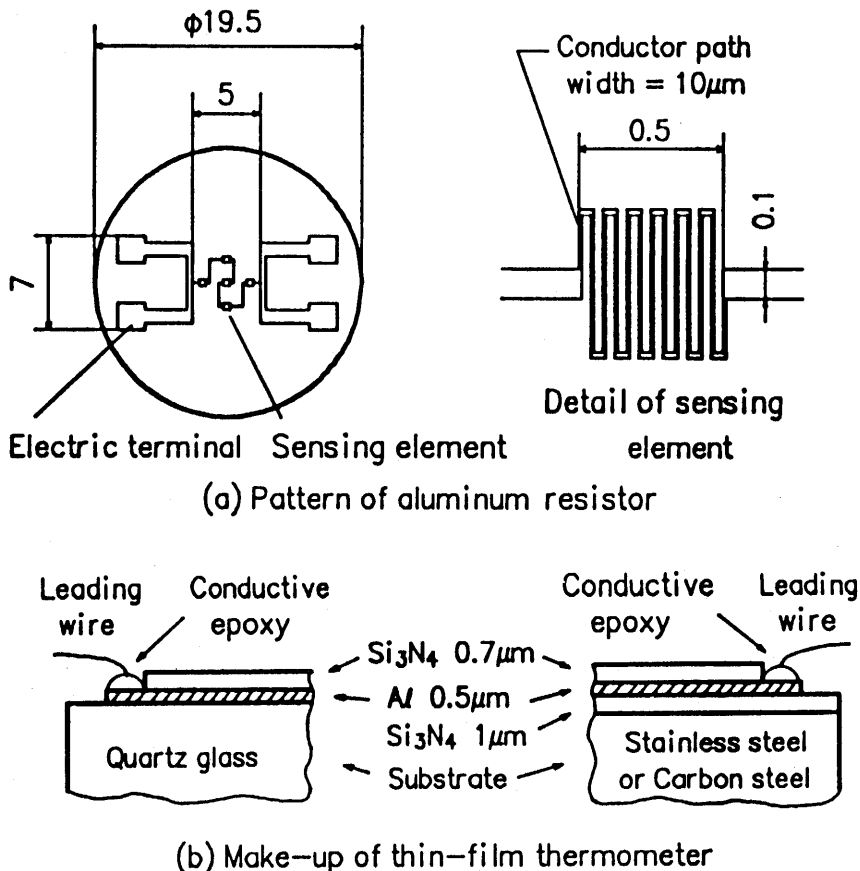


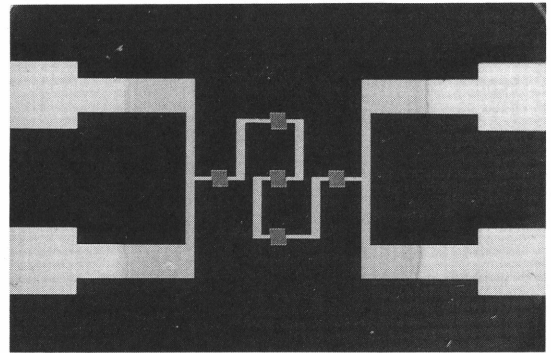
図-1 薄膜抵抗温度センサーのパターンと膜構造

ほ中央部の領域 (5 mm × 5 mm) に測温部を5ヶ所配置し、これらを直列に接続することによって面平均温度が出力されるようにしている。また、測温の対象とする低圧水蒸気の滴状凝縮においては、伝熱に最も寄与する液滴半径が数ミクロンから十数ミクロンの程度であることから、これらの液滴の底面温度を可能な限り検出するために、5ヶ所の測温部の線幅を10 μ mとし、印加電流によるジュール熱の影響を考慮してその形状をミアンダ状としている。なお、抵抗測定はリード線の影響を取り除くため4端子法によることにした。

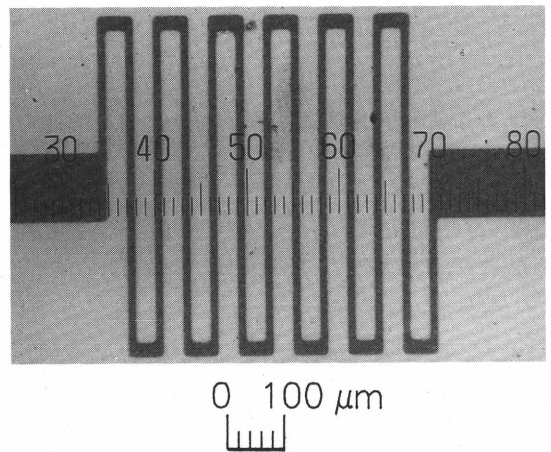
次に、薄膜抵抗温度センサーの製法について述べる。

まず、有機溶媒 (アセトン、トリクレンおよびエチルアルコール) によって十分に基板を洗浄し、第1層の絶縁膜である Si₃N₄ を低温プラズマ CVD 法によって約1 μ m堆積させ、基板となる母材との絶縁を充分に行っておく (ただし基板がガラスの場合はこの工程は不要である)。その上に、第2層として測温抵抗体となるアルミニウムを高周波イオンパatteringを用いて約0.5 μ m堆積させた後、湿式のフォトエッチング法による測温抵抗体のパターンニングを行った。その手順は、まず、ネガタイプフォトレジスト液をスピナー法により一様の膜厚に塗布し、90℃で30分間のプリベーキングを行う。その後、15秒間の紫外線露光によってフォトマスクのパターンの密着焼付けを行い、これを現象、さらにリンスを行って、ポストベーキングを140℃で30分間行う。次に、アルミニウムのエッチング溶液としてリン酸：酢酸：硝酸：水=75：15：5：5を使用し、アルミニウムのパターンを形成する。そして水洗した後、50℃のレジスト剝離溶液に3分間浸漬してフォトレジストを除去し、再び有機溶媒で十分に洗浄を行い、パターンニング工程が終了する。第3層は、測温抵抗体の保護のために、再び Si₃N₄ を低温プラズマ CVD 法によって約0.7 μ m堆積させている。この際、4つの端子部にはマスキングを行っており、これら端子部からのリード線の取り出しには、直径0.5mmのエナメル銅線を導電性接着剤を用いて接続している。写真-1に、石英ガラス上に形成した薄膜抵抗温度センサーの全体写真と測温部の顕微鏡写真を示す。

ここで、測温抵抗体にアルミニウムを選び、これをスパattering法によって形成した理由としては、アルミニウムの抵抗の温度係数が比較的大きく、薄膜の付着強度にも優れていること、さらにはエッチングが容易で微



(a) Pattern



(b) Sensing element

写真-1 薄膜抵抗温度センサー

細なパターンニングが可能ながあげられる。また、絶縁ならびにオーバーコートに窒化ケイ素膜を低温プラズマ CVD 法によって形成しているのは、低応力、耐水性、密着性がありピンホールの無い絶縁・保護膜を形成するためであり、そのために N₂ ガスと SiH₄ ガスによるプラズマ CVD を行うことにした。表-1にその際の膜形成条件を示しておく。なお、一般に絶縁被膜として使用されている SiO₂ では、膜応力が大きくクラックが生じ安いこと、および耐水性に問題があり、本研究の目的には適さなかった。

2.2 温度一抵抗特性の検定

電気抵抗が温度によって変わる性質を利用したのが抵抗温度センサーであり、温度 t (°C) における電気抵抗を R_t 、 $t = 0$ °Cでの電気抵抗を R_0 とするとき、抵抗の温

表-1 プラズマ CVD による Si_3N_4 膜の形成条件

Deposition Gas Flow rate	N_2 40.0 sccm
Deposition Gas Flow rate	SiH_4 18.0 sccm
Depositing Pressure	1.4×10^{-3} torr
Magnet Current	17.0 A
Forward Power	400 W
Reflected Power	20 W
Deposit Rate	330 Å/min

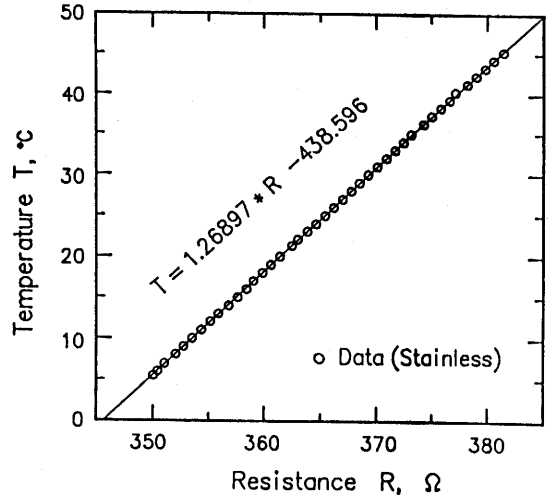


図-2 温度—抵抗特性

度係数 α は次式で定義される。

$$\alpha = d(R_t/R_0) / dt \quad (1)$$

一般に、金属の抵抗の温度係数 α は正の値をとり、温度 t の一次関数 ($\alpha = \beta + (\gamma/2)t$; β, γ は定数) で近似できる場合が多く、このとき、 R_t は

$$R_t = R_0 (1 + \beta t + \gamma t^2) \quad (2)$$

となる。よって、抵抗温度センサーの温度—抵抗特性を検定し、 α, R_0 を求めることにする。

検定法は、断熱を施した容器にイオン交換水 (電気伝導度 $1.5 \times 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ 以上) を入れ、これをホットプレート付きのマグミキサーの上のせて、液を攪拌し、かつ温度を調節することによって恒温液槽をつくる。この恒温液槽の液温測定には計量研究所で校正された標準温度計を用いており、この中に薄膜抵抗温度センサーを浸漬して温度を調節し、そのときの抵抗値を記録した。この時の電流端子には定電流発生装置 (ADVANTEST TR6142) により 1.0mA の一定電流を流している。温度

範囲は $0^\circ\text{C} \sim 50^\circ\text{C}$ とし、この範囲内で温度上昇ならびに温度降下を繰り返し、温度—抵抗特性の再現性および安定性を確認した。検定結果として、ステンレス鋼表面に形成した薄膜抵抗温度センサーの温度—抵抗特性を図-2に示す。この結果にみられるように、温度と抵抗値との関係には非常によい直線性があり、この範囲内における抵抗の温度係数は一定値とみなすことができる。また、センサーの安定性にも優れており、ドリフトも観察されなかった。石英ガラスおよび炭素鋼に関しても同様の結果が得られ、表-2にこれらのセンサーの 0°C における抵抗値 R_0 と抵抗の温度係数 α 、ならびに温度—抵抗特性の検定式における標準偏差をまとめて示した。この標準偏差の2倍を温度測定誤差に見積れば、本研究における表面温度測定にともなう誤差は最大で $\pm 0.12\text{K}$ となる。

表-2 薄膜抵抗温度センサーの諸特性

SUBSTRATE		RESISTANCE AT 273 K [Ω]	TEMP. COEFFICIENT OF RESISTANCE [K^{-1}]	STANDARD DEVIATION [K]
MATERIAL	λ_c [W/mK]			
QUARTZ GLASS	1.3	111.709	2.859×10^{-3}	0.060
STAINLESS STEEL (SUS304)	16.0	345.631	2.280×10^{-3}	0.048
CARBON STEEL (SS41)	51.6	258.857	2.185×10^{-3}	0.052

3. 滴状凝縮実験への応用

3.1 実験方法

低圧水蒸気の滴状凝縮において、伝熱面材料の熱伝導率が伝熱表面温度の変動および蒸気側熱伝達率に及ぼす影響を調べるために、今回製作した薄膜抵抗温度センサーを用いた実験を行った。3種類の薄膜抵抗温度センサー付き凝縮面は、図-3に示すように直径20mm、長さ89.5mmの円柱状の無酸素銅製の伝熱ブロックにそれぞれ接合され、滴状凝縮実験装置³⁾のテストセクション内に凝縮面が鉛直になるように組み込まれる。この伝熱ブロックの背後を冷水の衝突噴流によって冷却することによって凝縮面において蒸気が凝縮し、この時の熱流束をブロック内の4本の熱電対で測定する。実験では、熱電対ならびに薄膜抵抗温度センサーの出力をデジタル電圧計でA/D変換し、ミニコン(MELCOM 70/30C)に300秒間取り込んだ。この記録をもとに、蒸気温度と凝縮面表面温度の時間変化を観察し、これらの時間平均から平均過冷度を求め、熱流束とを用いて熱伝達率を算出した。なお、滴状凝縮を実現、維持するための促進剤にはオレイン酸を使用している。

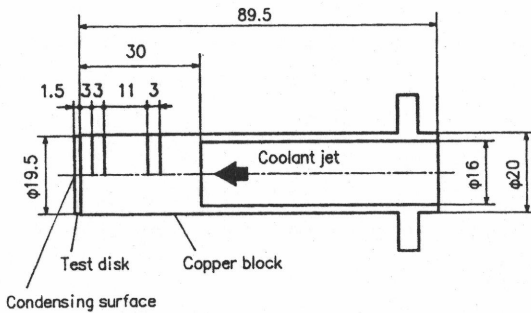
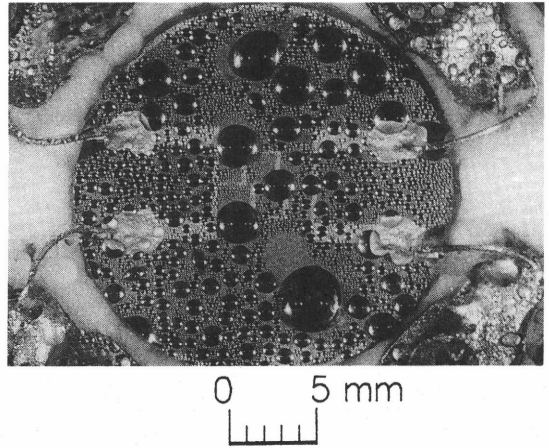


図-3 伝熱ブロック

3.2 実験結果

まず最初に、ステンレス凝縮面上での滴状凝縮の様子を写真-2に示す。液滴の形状はほぼ切り欠き球形であり、離脱液滴半径は1.8mm程度で、離脱液滴によって测温部の大半が覆われる場合のあることがわかる。

次に、薄膜抵抗温度センサーによる温度測定結果を示す。図-4は石英ガラス凝縮面の実験で得られた凝縮面表面温度履歴である。蒸気温度はほぼ一定であり定常状



$$T_s = 303.1 \text{ K}, \quad \Delta T = 1.7 \text{ K}$$

写真-2 滴状凝縮の様子

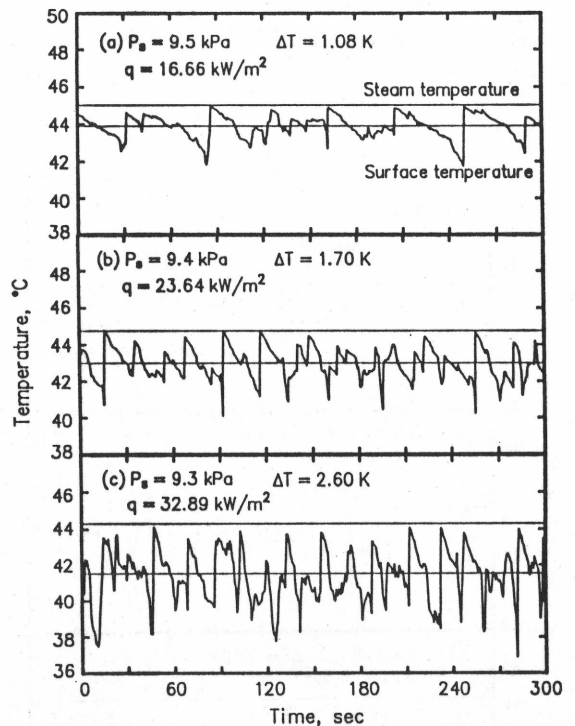


図-4 ガラス凝縮面温度変動の熱流束による変化

態になっているが、凝縮面表面温度には周期性のある特徴的な温度変動がみられる。この周期的な温度変動は熱抵抗の大きな液滴に覆われて低い温度にあった测温部が、

液滴の流下によって裸面になると急激に蒸気温度近くまで温度が上昇し、引き続き新たに発生する液滴が成長するにしたがって徐々に温度が低下していくが、上方より離脱液滴が流下してくると急に温度が低下し、再び裸面になると温度が急上昇するというサイクルを繰り返しており、凝縮面の面平均温度も滴状凝縮に追隨して周期的に変動していることがわかる。また、この凝縮面温度変動は、熱流束の増加とともにその周期は短くなり、温度変動幅は大きくなっていることがわかる。これは熱流束の増加によって液滴の凝縮成長速度が速くなるため、滴状凝縮の周期が短くなること、および液滴内温度勾配が大きくなって液滴の底面温度が低くなることに対応している。次に、凝縮面がステンレス鋼および炭素鋼の場合の凝縮面表面温度の変動例を図-5に示す。(a)のステンレス凝縮面の温度変動をガラス凝縮面の場合と比較すると、熱流束が大きくなっているにもかかわらず、温度変動幅は小さくなっていることがわかる。そして、平均過冷度もガラス凝縮面に比べて小さくなっており、熱伝達率が良くなっていることがうかがえる。さらに熱流束が増すと(b)、ガラス凝縮面の場合と同じように、温度変動

の周期は短く、変動幅は大きくなっているが、同時に平均過冷度も大きくなるため熱伝達率に大きな差は生じていない。この場合とほぼ同程度の熱流束に対して、本実験中で最も熱伝導率の高い炭素鋼凝縮面の温度履歴を(c)にみれば、(b)に比べて平均過冷度が小さくなっていることがわかる。

4. 薄膜抵抗温度センサーの測定誤差

凝縮面温度の測定誤差 δT_c には、検定式に含まれる誤差に加え、ジュール熱による発熱温度誤差および測温素子表面に施したオーバーコート層の熱伝導抵抗による定誤差の影響が考えられる。ジュール熱による自己発熱に対しては、線幅 b 、長さ L 、電気抵抗 R の薄膜に一定電流 I を流すときのジュール熱による熱流束 q_i は

$$q_i = I^2 \cdot R / (bL) \quad (3)$$

で求められ、これを $b=10\mu\text{m}$ 、 $L=52\text{mm}$ 、 $R=118\Omega$ 、 $I=1.0\text{mA}$ の値に対して見積ると 0.23kW/m^2 となる。この熱流束は本実験における最小の熱流束 12kW/m^2 と比較しても1.9%程度に小さく、従って自己発熱の影響は無視しえることがわかる。オーバーコート層による誤差 δT_{c0} は、その熱伝導率 λ_0 と厚み δ_0 および熱流束 q の関係より次式により求められる。

$$\delta T_{c0} = q \cdot \delta_0 / \lambda_0 \quad (4)$$

ここでは、実験における最大の熱流束 $q=100\text{kW/m}^2$ に対するオーバーコート層の熱伝導誤差を窒化ケイ素の熱伝導率 $\lambda_0=10\text{W/mK}$ から評価すると、 0.07K となる。以上を要するに、検定による誤差が 0.12K 程度であれば、自己発熱・オーバーコート層の影響は相対的に小さく、表面温度の測定誤差を ± 0.12 と見積っても良いことがわかる。

次に、薄膜抵抗温度センサーの応答速度に与えるオーバーコート層の影響について考える。簡略化のために薄膜抵抗温度センサーをオーバーコート層のみからなっているものとみなすことにする。まず、伝熱面の温度が時間的にステップ状に ΔT_0 上昇した時の薄膜裏面の温度の応答は、薄膜厚み δ_f が十分薄く、基板が十分厚いとし、かつ時間 t が大きいという条件下において、裏面の温度が表面温度の95%まで上昇するに要する時間 τ_1 は次式で考えられる⁴⁾。

$$\tau_1 = 100 (\rho C \lambda)_b \delta_f^2 / \lambda_f^2 \quad (5)$$

ここに、 ρ 、 C 、 λ はそれぞれ密度、比熱、熱伝導率であり、添字 f は薄膜、 b は基板を示す。ガラス基板上の

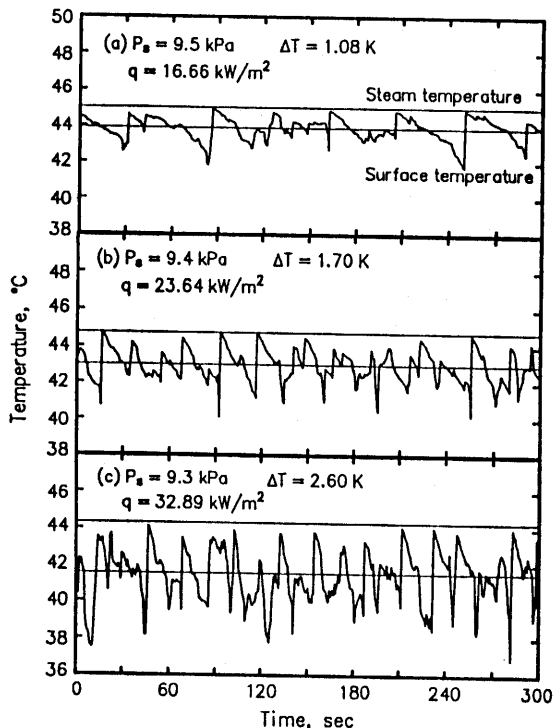


図-5 ステンレス鋼と炭素鋼凝縮面の温度履歴

Si₃N₄では、 $\delta_f=0.7\mu\text{m}$ 、 $\lambda_f=10\text{W/mK}$ 、 $\rho_b=2.20\times 10^3\text{kg/m}^3$ 、 $C_b=890\text{J/kg}\cdot\text{K}$ 、 $\lambda_b=1.3\text{W/mK}$ であるから、 $\tau_1=1.2\times 10^{-6}\text{s}$ となって十分に小さい。また、薄膜の熱容量による遅れ効果のための影響に関しては、先の場合と同じ条件において遅れ効果が5%以下になる時間 τ_2 は(6)式で求められる。

$$\tau_2=300(\rho C)_f^2\delta_f^2/(\rho C\lambda)_b \quad (6)$$

$\rho_f=2.2\sim 3.2\times 10^3\text{kg/m}^3$ 、 $C_f=710\text{J/kg}\cdot\text{K}$ を用いれば、 $\tau_2=1.4\times 10^{-4}\text{s}$ となる。

以上より、薄膜抵抗温度センサーには0.15msec程度の時間遅れがオーバーコート層によって生じることになるが、過度滴状凝縮のサイクルに比べると遙かに小さい値であることがわかる。

5. まとめ

(1) ガラス、ステンレス鋼、炭素鋼の表面にIC技術を利用して最小線幅 $10\mu\text{m}$ の薄膜抵抗温度センサーを形成して、 $0^\circ\text{C}\sim 50^\circ\text{C}$ の範囲で検定を行ったところ、温度—抵抗特性は非常によい直線性・安定性を示し、その標準偏差は0.06K程度に小さく、表面の温度を精度よく測定できることがわかった。また、一辺0.1mmの正方形内に納まる薄膜センサーを作ることもできるため、そのような微細センサーにより伝熱面の局所的な温度変化を計測記録することも可能である。

(2) この薄膜抵抗温度センサーを滴状凝縮熱伝達実験に応用し、凝縮面の面平均温度の変動をとらえることができた。この変動はセンサーの測温部を通過する液滴の挙動に対応しており、滴状凝縮のサイクルに追従して周期的に変動し、その周期は熱流束とともに短くなり、温度変動幅は熱流束とともに増大する。

6. 謝 辞

薄膜抵抗温度センサーの製作にあたって、アルミ膜の形成では本学電気工学科の遠山尚武助教授、パターンニング工程では東京大学工学部の岡部洋一助教授に便宜をはかって頂き、プラズマCVDでは(株)日本真空超材料研究所の塚原園子室長のご協力を受けたことを記し、謝意を表します。終わりに、この研究を進めるためにあたりご指導を頂いた故 田中宏明 元東京大学工学部教授に深く感謝致します。

参 考 文 献

- (1) Hannemann, R. J. and Mikic, B. B., Int. J. Heat Mass Transf., 19-11(1976), 1309.
- (2) Nagata, S. and Tanasawa, I., Proc. 8th Int. Heat Transf. Conf., 4(1986), 1665.
- (3) 幡宮・田中, 機論, 52-476, B (昭61), 1828
- (4) 河村・ほか4名, 伝熱研究における温度測定法, (昭60), 90, 養賢堂.