クライオポンプの特性(Ⅱ)*

西田啓一**・後藤正敏**・井上邦宏**・金原 榮***

(昭和44年5月23日受理)

Some Characteristics of Cryopump (Ⅱ)

Keiichi NISHIDA, Masatoshi GOTOH, Kunihiro INOUE

(R/D Department, Osaka Oxygen Industries, Ltd.,
94, 4-Chome, Nozatohigashi, Nishiyodogawa-ku, Osaka)
and

Akira KINBARA

(Department of Applied Physics, Faculty of Engineering,
University of Tokyo, Bunkyo-ku Tokyo)

(Received May. 23 1969)

Three types of cryopumping system using with a Claude cycle refrigerator (Cryogenerator), a Gifford-McMahon cycle refrigerator, and a liquid helium vessel (vertical and horizontal type) were constructed. The pump-down characteristics and the nitrogen-hydrogen trapping phenomena were investigated. The measured pumping speed of nitrogen, argon, and hydrogen were 3.8, 2.7, and 13.4 l/sec · cm², respectively. These values were nearly equal to the caulated pumping speeds. The heat of condensation of nitrogen was estimated from the vaporization rate of liquid helium (or hydrogen) and the flow rate of introduced nitrogen gas.

1. まえがき

ここ、数年間にクライオポンプの基本的な特性に関する実験結果が、多数報告されており、スペースチャンパーなど大容量排気に応用化されたものもある。しかし、スペースチャンパー以外に実用化されたものは、試作段階にある。われわれは蒸着用の排気ポンプとして、クライオポンプの特徴を生かすため実験を行っており、その一部は、すでに報告した¹⁾²⁾³⁾⁴⁾。

この報告では、排気用ポンプとしてのクライオポンプの特性について、その後の結果を述べる。

4.2°Kで10Wの冷凍出力をもつ極低温冷凍機(クライオジェネレーター)を用いたクライオポンプ、および液体ヘリウムを注入する型のクライオポンプに関しては先に報告したが¹⁾³⁾、われわれは、さらに、ギホード・マクマホンサイクル冷凍機⁵⁾を用いたクライオポンプを試作したので、これらのポンプの性能の比較、検討を行う。

2. クライオポンプ設計の問題点

クライオポンプを設計するとき、考慮すべき要素は、いろいろあるが⁶⁾、われわれは、3種類のクライオポンプについて、次に示すような諸点について検討を加え、実験を行なった。(1)種類：コンデンセーション、ソーブション、トラッピング (2)物性値：蒸気圧、凝縮熱、吸着熱、熱伝導率、輻射率、アコモディション係数 (3)圧力測定：到達圧力、圧力計とその方向、気体温度、サーマルトランスビレーション、残留ガス(分圧)、コンダクタンス、アウトガス量 (4)排気速度：圧力との関係、温度との関係、ガスの種類との関係、他のガス分圧との関係、装置・構造との関係、コンダクタンス (5)凝縮係数：温度との関係、表面との関係(裸面、結晶構造) (6)応用：スペースチャンパー、蒸着、高速風洞、MHD (7)その他：冷凍機あるいは冷媒、温度計、吸着剤、導入ガス組成、パネルの構造と温度分布、補助排気系。

試作した装置の概要をTable 1にまとめた。これらのクライオポンプの共通の利点は、排気速度が大きく、油蒸気など、真空ポンプからの汚染がないことである。また、欠点は水素ガスに対して、固体水素の蒸気圧(4.2°Kで 3×10^{-6} Torr)までしか排気できないことである。

* 昭和43年11月15日 第9回真空に関する連合講演会で講演

** 大阪酸素工業株式会社(大阪市西淀川区野里東4-94)

*** 東京大学工学部物理工学科(東京都文京区本郷7-3-1)

Table 1 Characteristics of three types of cryopump.

	Cryopump by using a cryogenerator	Cryopump by using a Gifford-McMahon refrigerator	Cryopump by using a liquid helium vessel (vertical & horizontal)
Area of floor (m ²)	10	1	0.5
Electrical supply (KW)	20	1	—
Cold power(W)	10(4.2°K)	0(10°K) 2.5(15°K)	—
Starting time(min)	90	40	10
Liquid helium consumption(cc/hr)	—	—	40
Diameter of evacuation valve (in.)	6	6	6
Ultimate temperature(°K)	4.2	10	≤4.2
Pumping speed(Experimental) (l/s)	10 ³	10 ³	10 ³
Pumping speed(Calculated) (l/s)	10 ⁶	10 ⁵	10 ³
Ultimate pressure(Torr)	5×10 ⁻⁹	2×10 ⁻⁸	1×10 ⁻⁸
Handling	rather difficult	easy	rather difficult
Recovery of liquid helium	necessary	necessary	unnecessary
Mechanical noise	a little	a little	no
Electrical noise	yes	yes	no
Operating time (hr)	>1000	>3000	>24
Use	large chamber	small chamber	experimental

3. 試作装置

3.1 冷凍機を用いるクライオポンプ

3.1.1. クライオジェネレーターを用いるクライオポンプ

4.2°Kで 10W の冷凍出力をもつ冷凍機を用いるクライオポンプは、前報で述べたが¹⁾²⁾、このクライオポンプチャンバーの断面図を Fig. 1 に示す。

このチャンバー内には、直径 200mm の銅板製のクライオパネルがあり、このパネルは、4.2°K の液体、ガス混合のヘリウムにより冷却されるようになっている。外部から、このパネルへの熱侵入を防ぐため、液体窒素で冷却されるシールド板とシェブロンパフが取り付けられている。このチャンバーの内容積は、25l で、この外筒には各種の測定器を取付けてある。上部には、6 インチのゲートバルブを取付け、その上に蒸着用ベルジャーを取付けできるようになっている。

3.1.2 ギホード・マクマホン型冷凍機を用いるクライオポンプ

15°Kで、2.5W の冷凍出力をもつ、ギホード・マクマ

Fig.1 Schematic diagram of cryopump with a cryogenerator.

ホンサイクル冷凍機（クライオメック社製）を使用したクライオポンプのチャンバーの断面図を Fig. 2 に示す。

このチャンバー内には、面積 100cm² のアルミニウム

Fig. 2 Schematic diagram of cryopump with a Gifford-McMahon refrigerator.

Fig. 3 Refrigeration power of a Gifford-McMahon refrigerator.

製のクライオパネルがあり、このパネルは最低 10°K に冷却される。外部から、このパネルへの熱侵入を防ぐため、液体窒素溜と、これに接続させたルーバーが取り付けられている。このチャンバーの内容積は、30 l である。この冷凍機の冷凍出力の温度特性は Fig. 3 に示すように 25°K 以下では、直線的に減少し、10°K で零になる。

3.2 液体ヘリウム注入型クライオポンプ

液体ヘリウムが、比較的簡単に入手できるようになってきた。そのため、液体ヘリウムを注入する型の簡便なクライオポンプの用途も考えられるので、Fig. 4 に示す横型のものと、Fig. 5 に示す縦型のものを試作し、その性能を測定した。

横型と縦型の性能の特別な相異点はない。横型、縦型とも、蒸発したヘリウムガスの顕熱を利用するため、シ

Fig. 4 Schematic diagram of cryopump with liquid helium vessel (horizontal type).

Fig. 5 Schematic diagram of cryopump with liquid helium vessel (vertical type).

ールド板（排気面としても利用される）を冷却した後、ヘリウムガスを外部へ放出するように考慮した。また、熱侵入を防ぐため、液体窒素溜と、これと接続させたルーバー・バップルが取り付けられている。液体ヘリウム溜の容積は 2.5 l、液体窒素溜の容積は 7 l である。シールド板、および、ルーバー・バップルが銅製であることを除いて他の部分はステンレス製である。なお、縦型では、常温部の壁面からの放気ガスが、チャンバー内に入らないようにするため、液体窒素溜の外側と内側の間の空間を独立した真空部にしてあり、液体ヘリウム量を知るため、差圧式液面計を取付けた。

3.3 性能測定装置

圧力測定には、主として、B-A 型電離真空計を用い、低真空領域では、一部ピラニー型真空計を用いた。排気速度は、前報のようなデュレット法で測定した¹⁾。またクライオパネル温度は、主として蒸気圧温度計で測定した。

Fig. 6 Pump-down characteristics of cryopumps. Pump-down characteristics observed in the chambers using the refrigerator (A), the Gifford-McMahon refrigerator (B) and liquid helium vessel (C). (D) and (E) show the pump-down curves in the test dome and the chamber respectively after the 6" valve between the test dome and the Gifford-McMahon refrigerator was opened.

- (A) Preparation ($S_A \rightarrow P_A$ Chamber evacuated by auxiliary pump)
Evacuation ($P_A \rightarrow F_A$ Cryopanel refrigerated)
- (B) Preparation ($S_B \rightarrow P_B$ Chamber evacuated by auxiliary pump)
Evacuation ($P_B \rightarrow F_B$ Cryopanel refrigerated)
- (C) Preparation ($S_C \rightarrow P_C'''$ Chamber evacuated by No. 1 sorption pump,
 $P_C''' \rightarrow P_C''$ by No. 2 sorption pump,
 $P_C'' \rightarrow P_C'$ Liquid nitrogen injected)
Evacuation ($P_C' \rightarrow F_C$ Liquid helium injected)
- (D) Preparation ($S_D \rightarrow P_D$ Test dome evacuated by auxiliary pump)
Evacuation of test dome ($P_D \rightarrow F_D$ 6'' valve opened and evacuated by cryopump (B))
- (E) Evacuation of chamber ($P_E \rightarrow F_E$ 6'' valve opened and evacuate test dome (D))

4. 測定結果

4.1 压力变化

4.1.1 準備

クライオポンプでは、クライオパネルを効果的に冷却するため、極低温部を外部の高温部から、できるだけ、断熱する必要がある。このため、最初、何らかの方法でチャンパー内にある圧力以下の状態にして、空気による熱の伝達を減らしてから、冷凍機を動作させたり、液体ヘリウムを供給したりする。その圧力に到るまでの段階

Fig. 7 Pumping speed of each cryopump for various kinds of gas.

Table 2 Pumping speed by cryopump with the cryogenerator (10^{-4} – 10^{-6} Torr)

	Calculated value <i>l/s cm²</i>	Experimental value <i>l/s cm²</i>
N ₂ gas	3.1	3.8
Ar gas	2.6	2.7
H ₂ gas	11.6	13.4

を，ここでは，準備段階ということにする．このため，補助ポンプとして，ソーブションポンプやマイスナートラップをつけた回転ポンプなどを用いた．準備段階にいたってはじめて，クライオポンプの動作を行なわせる．おのおののクライオポンプの準備段階での圧力降下状態を Fig. 6 の S 点から P 点の間の曲線で示す．

4.1.2 クライオポンプによる排気

前述の準備ができて、クライオポンプにより、チャンパー内の排気をする。この時の圧力変化状態を Fig. 6 の P点から F点の間の曲線で示す。F点の到達圧力に達した後、6インチのバルブを通して、Fig. 6 の S_D点から P_D点まで、予備排気されている内容積 50ℓ のテストドームをギホード・マクマホン冷凍機を用いるクライオポンプで排気した時の、テストドーム内でのポンプダウンの一例を Fig. 6 の D曲線の P_D点から F_D点の間に示す。この時のチャンパー側の圧力は、E 曲線の P_E点から F_E点に変化する。他のクライオポンプでも、ほぼ、同様の傾向が得られた。

4.2 排气速度

クライオジェネレーターを用いるクライオポンプの窒素、アルゴン、水素ガスに対する排気速度、および、液体ヘリウムを注入する型のクライオポンプの窒素ガスに対する排気速度を **Fig. 7** に示す。後者の横型と縦型のクライオポンプの差は認められない。液体水素を用いて

も測定したが、液体ヘリウムとの差異はなかった。ギホード・マクマホン冷凍機を用いるクライオポンプの窒素ガスに対する排気速度も Fig. 7 に示すように同じ傾向である。水素ガスに対する排気速度は、飽和蒸気圧 (3×10^{-6} Torr, 4.2°K) までは、いちじるしく大きい 10^{-6} Torr 領域になると急激に減少する。

各ガスのクライオパネルの単位面積当りの排気速度は Table 2 のようになり、ガスの種類によらず、実験値と計算値と一致がみられた。ここで、実験値はクライオジェネレーターを用いるクライオポンプで測定した値で、計算値は次式で求めた値である。

$$S_0 = \frac{VF}{4} \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 S_0 : 排気速度 ($l/s \text{ cm}^2$)、 V : 平均分子速度 (cm/s , 300°K)、 F : シェブロンパプルの通過確率で 0.26 である⁷⁾。

4.3 到達圧力

クライオジェネレーターを用いるクライオポンプでは 5×10^{-9} Torr (クライオパネル温度 4.2°K)、ギホード・マクマホン冷凍機を用いるクライオポンプでは、 2×10^{-8} Torr (クライオパネル温度 10°K)、液体ヘリウム注入型クライオポンプでは、 1×10^{-8} Torr (シールド板温度 20°K 附近) である。残留ガス分析は、全装置で行なっていないが、水素ガスが大部分をしめていると思われる¹⁾。また、これらの値は、いずれも、ベークなしで得られたものである。

4.4 窒素ガスと水素ガスの同伴凝縮

4.2°K での、水素の蒸気圧は 3×10^{-6} Torr であるが、実際の到達圧力は、これより低いのが普通である。チャンバー内の圧力が、 3×10^{-8} Torr になったところで、水素ガスを数回にわたって多量に導入すると、水素の蒸気圧の 3×10^{-6} Torr になる。ここへ、窒素ガスを導入す

Fig. 8 Hydrogen trapping within solid nitrogen.

Fig. 9 Vaporization rate of liquid helium (Introduced gas is nitrogen at 300°K).

Fig. 10 Vaporization rate of liquid hydrogen (Introduced gas is nitrogen at 300°K)

ると窒素ガスが、凝縮するとき、水素ガスを同伴するものと考えられ⁸⁾⁹⁾¹⁰⁾、元の圧力に戻る。この様子を、Fig. 8 に示す。一たん、窒素ガスを導入すると、あと、水素を導入しても、水素の蒸気圧とはならないことが見出された。

4.5 窒素の凝縮熱

ガスの凝縮熱を求めることは、冷凍出力と排気可能量の関係を知るために重要である。この値を求めるため、ギホード・マクマホン冷凍機の正確な出力を測定し、クライオポンプに導入した窒素ガス量の関係から、窒素が

Fig. 11 Heat of condensation of nitrogen gas.
 (1) 300°K to 20°K
 (2) 77°K to 20°K
 (3) Gifford-McMahon refrigerator
 (4) Liquid helium vaporization(vertical type), Helium enthalpy; 4.2°K liquid to 20°K gas.
 (5) Liquid helium vaporization(horizontal type) Helium enthalpy; 4.2°K liquid to 20°K gas
 (6) Liquid hydrogen vaporization (horizontal type), Hydrogen enthalpy; 20.4°K liquid to 20.4°K gas.

Table 3 Calculated Heat of condensation for introduced nitrogen gas.

Introduced nitrogen gas temperature °K	80	300
Heat of condensation J/Torr l (4.2°K)	0.549	0.929
Heat of condensation J/Torr l (10°K)	0.545	0.925
Heat of condensation J/Torr l (20°K)	0.538	0.917

凝縮するときの凝縮熱を求めた。また、液体ヘリウムの潜熱、および、顕熱の値は正確に判っているので、液体ヘリウム注入型クライオポンプに導入した窒素ガス量と液体ヘリウムの蒸発量の関係から凝縮熱を求めた。同様に、液体水素を用いた場合についても行なった。Fig. 9は導入した窒素ガス量と液体ヘリウムの蒸発量の関係を示し Fig. 10 は導入した窒素ガス量と液体水素の蒸発量の関係を示している。

Fig. 11 は、これらの結果を整理したものである。点線で示した計算値は次のようにして求めた。

$$Q = H_T - H_{T'} \\ = \Delta H_{S_0} + \int_0^T C_p(G) dT - \int_0^T C_p(S) dT$$

Fig. 12 The relation between refrigeration power and calculated pumping speed for nitrogen (cold power : 10W, Temperature of cryopanel : 4.5°K, As : Area of cryopanel)

$$= \Delta H_{ST'} + \int_{T'}^T C_p(G) dT \quad \dots\dots\dots (2)$$

ここで、 Q : 凝縮熱、 H_T : T °K のガスのエンタルピー、 $H_{T'}$: T' °K の固体のエンタルピー、 ΔH_{S_0} : 0°K、における昇華熱、 $C_p(G)$: ガスの比熱、 $C_p(S)$: 固体の比熱、 $\Delta H_{ST'}$: T' °K における昇華熱、 T' : 気体から固体になる温度、 T : 導入ガス温度である。窒素ガスの場合、 $\Delta H_{ST'}$ は 1721 cal/mole (10°K) である¹¹⁾。 $\int_{T'}^T C_p(G) dT$ は、エンタルピー差から求めた¹²⁾。 (2) 式から窒素ガスの凝縮熱を計算すると Table 3 のようになる。

4.6 冷凍出力と排気速度の関係

冷凍出力 W_T (J/s) が与えられているクライオポンプの可能排気速度を計算してみる。最大排気速度 S (l/s) は次式により求められる。

$$S = S_0 (0.26 A_s) \quad \dots\dots\dots (3)$$

ここで、 S_0 は平均分子速度より決まる理想排気速度 (l/s cm²) で、次式により求められる。

$$S_0 = 3.638 (T/M)^{1/2} \quad \dots\dots\dots (4)$$

ここで、0.26 : シェブロン通過確率¹³⁾、 A_s : クライオパネル面積 (cm²)、 T : 温度 (°K)、 M : 分子量である。

一方、冷凍機の出力に関して次式が成立する。

$$W_T = W_c + W_r \quad \dots\dots\dots (5)$$

ここで、 W_c : 凝縮熱量 (J/s)、 W_r : 70°K の面から 4.2°K のクライオパネル面への輻射熱 (J/s) である。 W_c および、 W_r は次式から求められる。

$$\dot{W}c = QSP \quad \dots\dots\dots (6)$$

$$\dot{W}r = 2.4 \times 10^{-5} A_s \quad \dots\dots\dots (7)$$

ここで、 Q ：凝縮熱(J/Torr l)、 P ：圧力(Torr)である。(3)式から(7)式を整理して、 S を W_T 、 S_0 、 Q 、 P という測定可能量に示すと次式になる。

$$S = \frac{1.083 \times 10^4 W_T S_0}{1 + 1.083 \times 10^4 Q S_0 P} \quad \dots\dots\dots (8)$$

W_T が 10J/s のとき、窒素ガスに対する排気速度の計算結果を Fig. 12. に示す。ただし、窒素ガスの凝縮熱は 0.929 J/Torr l (300°K のガスから 4.5°K の固体)、0.549 J/Torr l (80°K のガスから 4.5°K の固体) としている。図から低圧になるにしたがって、クライオパネルを大きくすることができるのが判るが、輻射熱の影響が大きくなり、排気速度は一定になる。Fig. 12 中に、クライオジェネレーターを用いたクライオポンプでの窒素ガスに対する排気速度を示しているが、この冷凍機の出力は 4.2°K で 10J/s であるから、 10^{-3} Torr 附近で、最大の排気速度となり、これより、低真空領域では、排気速度計算値の線にそって点線で図示する様に急激に減少すると考えられる。

4.7 固体窒素の熱伝導性

固体窒素の熱伝導性を知ることは、クライオポンプの能力限界を知る上に重要である。クライオジェネレーターを用いたクライオポンプにおいて、多量の窒素ガスを導入し、そのクライオパネルに固化した厚みが、約 1cm になっても、排気速度が減少しないことを確認した。今まで、固体窒素の熱伝導性について詳しく報告されたものはなかったが、最近、その報告がある¹³⁾。それによると、凝縮した固体窒素の密度は、液状から固化した固体窒素の密度 (20°K で 1.0265 g/cm³) の約 88% の 0.9g/cm³ である。この時の熱伝導率は 1.2m W/cm²K である。フーリエの熱伝導式が成立するとすると、次式から、クライオパネル面と固体表面の温度差 ΔT (°K) を求めることができる。

$$\Delta T = Qd / \lambda A_s \quad \dots\dots\dots (9)$$

ここで Q ：凝縮熱量 (J/s)、 d ：厚み (1cm)、 λ ：熱伝導度 (1.2×10⁻³ J/s cm²K)、 A_s ：クライオパネル

面積 (314 cm²) である。 1×10^{-3} Torr で、2000l/s で排気したとき、 Q は 1.1 J/s である。これから計算すると 1cm に固化したときの温度差 ΔT は約 3°K となる。

5. 結 び

われわれは 3 種類のクライオポンプについての実験でクライオポンプを設計するための基本的なデータを得ることができた。それぞれのクライオポンプは、その特色をもち、実用化されているスペースチャンバー以外にもたとえば蒸着用 の排気ポンプとして、今後、大いに利用される可能性がある。クライオポンプの技術は最新の真空技術と低温技術を駆使しているだけに、多くの発展研究の余地が残されているものと思われる。

〔文 献〕

- (1) 西田, 松井, 柳井：真空 10(1967) 63.
- (2) K. Nishida, S. Matsui, M. Yanai : 1st. *International Cryogenic Engineering Conference Proceeding* (Heygood-Temple Industry Publication, 1968) 23.
- (3) 後藤, 西田, 金原：第14回 応用物理学関係連合講演会(1967).
- (4) 金原, 山口, 吉田, 菅原, 後藤, 西田：真空 12 (1969) 95.
- (5) W. E. Gifford : *Advances in Cryogenic Engineering, Vol. 11* (Plenum Press, 1966) 152.
- (6) 中川：真空 9 (1966) 164.
- (7) L. L. Levenson, N. Milleron, R. H. Davis : 7th. *NVS*(1960) 371.
- (8) J. Hengevoss, E. A. Trendelenburg: 10th. *NVS* (1963) 101.
- (9) E. L. Garwin : *Advances in Cryogenic Engineering, Vol. 8* (Plenum Press, 1963) 37.
- (10) E. Müller : 1 t. *International Cryogenic Engineering Conference Proceeding* (Heygood-Temple Industry Publication, 1968) 30.
- (11) N. J. Johnson : *WADD Technical Report 6056* (1960); J. A. Collins, J. P. Dawson: *AEDC-TDR 6351* (1963).
- (12) D. B. Mann: *NBS Technical Note 154* (1962).
- (13) K. W. Rogers : *NASA Contractor Report 553* (1966).