クライオスタット材料のアウトガス*

尾原 昭徳**・荻野 治**

(昭和60年4月3日 受理)

Outgassing of Cryostat Materials

Akinori OHARA and Osamu OGINO

(Mitsubishi Electric Corp., Amagasaki, Hyogo)

(Received April 4, 1985)

1. ま え が き

クライオスタット(超電導マグネットなどを収納した極低温断熱容器)における真空技術は、極低温部への熱侵入量を減らす手段の一つとして必要不可欠で、通常は圧力 $10^{-3}\sim 10^{-5}$ Pa ($10^{-5}\sim 10^{-7}$ Torr)の真空が必要である。冷却するとクライオポンプ作用により 10^{-6} Pa以下の超高真空に達するが真空断熱の目的は、 10^{-3} Pa程度で果たし得る。定常運転時の真空断熱系は、系外から洩れ込むガスをなくするとともに、系内のアウトガス量を少なくして真空排気ポンプを切り離す、いわゆる封じ切り状態にするかあるいは、比較的排気速度の小さいポンプで連続排気して所要の圧力を得ている。しかし定常運転に至る前の大気圧からの粗引きや、クライオスタット製作途中のリークテストでの排気では、使用している材料から多量のアウトガスがあるため、所要の圧力に達するには、非常に大きな排気速度のポンプが必要である。

ここでは、クライオスタットの製作およびこれらを運転する立場からクライオスタットにおける材料のアウトガスと真空排気の問題について述べる。

2. クライオスタットにおける真空排気

超電導マグネットを収納するクライオスタットの構造としては種々の形状のものが製作されている。大別すると、図1のように、超電導マグネットを上部常温部のフランジから吊り下げてヘリウム槽(液体ヘリウムを貯め

る槽)に挿入することが可能な、いわゆる汎用クライオスタットと、図2のように超電導マグネットの形状、運転状況に合わせてヘリウム槽の構造を決める専用クライオスタットに分けられる。

図1の汎用クライオスタットでは、ヘリウム槽の内径未満の寸法であれば、どのような形状のマグネットでも取付、交換が可能で利用度が高い。一般に構造が単純であるが、常温部から極低温部まで伝導や輻射による熱侵入量が多いことから、短時間の運転用として使用されることが多い。図2の専用クライオスタットではヘリウム槽の構造はマグネットの構成、使用目的に最適のもので、他のマグネットとの互換性は無いが、極低温部への熱侵入量が最小となるように設計される。

これらのクライオスタットで真空排気を行なうには二つの段階がある。一つは製作の過程でヘリウム槽、室素槽、真空槽など各構成部分がそれぞれ耐真空容器として使用できるかどうかのリークテストの段階であり、他の一つは製作完了後、冷却運転前の真空断熱系を動作させる段階である。これらの状況を図3のクライオスタットの真空排気フローに示す。④点から⑧点までの操作は耐真空容器としてのリークテストを行う過程で各構成部品すべてが合格する必要がある、製作の工程上、時間が長くなる。また④点から⑧点までは真空断熱系の動作を行なう過程である。

3. リークテスト

リークテストには加圧法と真空法がある。加圧法は容器の内部を空気や他のガスで加圧して、石けん水や加圧したガス専用の検知器で洩れを探す。真空法は容器の内部を真空排気して、外部から空気や他のガスが洩れ込む

* 昭和59年11月16日、低温工学協会共催日本真空協会関西支部第6回冷凍部会で講演

** 三菱電機㈱(兵庫県尼崎市塚口本町8-1-1)

図1 汎用クライオスタット

図2 専用クライオスタット

のを圧力の上昇やガイスラー管の放電色の変化，あるいはヘリウムリークデテクタで探す方法である。

クライオスタット製作の現場では真空法のうち，ガイスラー法とヘリウムリークデテクタによる方法がよく利用される。

図3 クライオスタットの真空排気

3.1 ガイスラー法

容器に取り付けたガイスラー管を放電させると残留ガス特有の色，例えば空気では赤紫色が現われる。洩れ探しでは洩れのありそうな箇所 آلアルコールやブタンなどを吹きつける。もし洩れがあると，その孔から入り放電色が赤紫から青色に変化するので判定できる。ガイスラー法は微量量の洩れの検知は困難であるが，かなりの量の洩れに対しては，真空排気の初期のロータリポンプによる粗引中に行なえるため，早期発見に有効な手段である。

3.2 ヘリウムリークデテクタによる方法

ヘリウムリークデテクタは質量分析計の原理を利用した洩れ探しの専用器である。洩れがあると吹きつけられたヘリウムが孔から入り，リークデテクタ内でイオン化され，電磁場中で質量分析されて検出される。このリークデテクタは，微小な孔でも容易に通過するヘリウムだけを検出するので感度が非常に高く， 1×10^{-11} Torr l/s の洩れ量まで検知することができる。しかしデテクタの正常動作のために容器の圧力を $10^{-3} \sim 10^{-4}$ Torr 程度に下げることが必要で，アウトガスが多いと真空排気に要する時間が長く，すぐに検査にかかれないのが欠点である。

表1 真空中の残留ガス成分比の例 (%) ²⁾

真 空 容 器	条 件	H ₂ O	H ₂	CO+N ₂	CH ₄	CO ₂	O ₂
SiO 生成炉 ¹⁾	予備排気 (10 ⁻⁵ Torr)	90	3.3	4.7	1.5	0.3	0.007
	SiO 生成中 (10 ⁻⁶ Torr)	50	37	7.5	1.8	2.5	0.06
Vacuum Evaporator ²⁾	ベークンなし (10 ⁻⁶ Torr)	1.5Hr 後	44	43	4.9	6.7	0.4
		214Hr 後	27	61	7.5	3.2	0.3
	10 ⁻³ Torr, 250°C で、 1 時間ベークン (10 ⁻⁷ Torr)	1.3Hr 後	31	52	10.5	4.7	0.5
		19.2Hr 後	24	56	14	4.8	0.7
	10 ⁻⁵ Torr, 250°C で、 1 時間ベークン (10 ⁻⁶ Torr)	4.5Hr 後	40	45	7.8	5.6	0.8
		22.2Hr 後	33	52	8.7	3.7	0.9

クライオスタットでは液体ヘリウムを貯めるヘリウム槽のリークテストは特に入念におこない、リークデテクタの最高感度において検知しないものを合格としている。

4. アウトガス

4.1 アウトガスの成分

材料からのアウトガスの問題は真空技術にとって重要である。それは実際に真空排気ポンプを運転して到達圧力と所要時間が推定値と大きく違うことを経験することからもわかる。その主な原因は材料に吸蔵あるいは付着していた多量のガスが排気によって徐々に放出されるため、ガスの成分としては表1に示すように水分が多く、残りは水素、窒素、メタン、炭酸ガスなどの空気成分である^{1,2)}。また後で述べる多層断熱材を使用した真空容器からのアウトガスは99%以上が水分であるという報告もある³⁾。

専用クライオスタットのヘリウム槽を排気する場合では、マグネットの電気絶縁物のワニス類、支持材からの有機、無機成分のガスなどが考えられる。

4.2 アウトガスの量

真空容器の体積 V 、排気速度 S 、発生ガス量 Q を有する真空系の圧力 P は次式で示される。

$$Q - PS = V dp/dt \quad (1)$$

圧力が平衡状態に近づくと、 $PS \gg V dp/dt$ となる。したがって

$$P = Q/S \quad (2)$$

ここで発生ガス量 Q は、真空系内で発生するアウトガス量 Q_a と系外からの洩れガス量 Q_e である。系外からの洩れガス量はクライオスタットを製作する過程でリークテストと洩れ箇所修理によって無視できる位に小さくなっている。このため発生ガス量 Q は真空系内で発生するアウトガス量 Q_a とみなせる。つまり、アウトガス

図4 各種材料の室温におけるアウトガス量

量の測定は圧力が平衡状態に近いときや、時間的変化の小さいときは、(2)式より $Q_a = P \cdot S$ 、また時間的変化が大きいときはアウトガス量が多いので、排気ポンプ側の弁を閉じ ($S=0$)、(1)式より $Q_a = V dp/dt$ から求める。いわゆる圧力上昇法で通常はこの方法で測定される。

図4に各種材料の室温におけるアウトガスの量を示す⁴⁾。これらの値は測定時の圧力、試料の保管状況などによって異なるが、計算する上での目安にはなる。

クライオスタットの断熱材料の一つである多層断熱材は通称「スーパーインシュレーション」と呼ばれる。薄い熱の反射材と断熱スペーサを交互に20～50層、またはそれ以上に積層され、断熱真空部で極低温部の表面を包

図5 多層断熱材のアウトガス量

み込む形状で使用する。図5は多層断熱材のアウトガス量を測定した例である。反射材はアルミ蒸着マイラーシート、スペーサはナイロンネットで寸法は幅1,000 mm、長さ5,000 mmのものを40層で構成した。測定は試料を容積1,460 lの容器に入れ、3,000 l/mのロータリポンプで真空排気し、適当な時間毎にバルブを閉じ、真空計の変化量から求めた。この時の圧力は0.05~0.1 Torrであった。

図5で曲線Aは乾燥状態で保管していた試料を容器に入れた直後のデータ、曲線BはAの測定後大気で真空を破り一日放置した後のデータ、曲線CはBの測定後同様に行なったデータである。また曲線Dは湿度40~70%の大気中に10日間放置した後のデータで、クライオスタットの製作中の状態を想定した。これらのデータからアウトガス量が落ちつくには、かなり時間がかかることがわかる。

5. ベーキング

多層断熱材は反射材とスペーサを交互に多数重ねた構成で、表面積が非常に大きい。このため多量の付着、吸蔵ガスを持っているが、前述のようにそのほとんどは水分である。このため所要の平衡圧力（到達真空度）に達するのに時間が長くなる。あるときは水分の蒸気圧と平衡して圧力が下がらないことがある。これは水の蒸発熱が大きくて、多量の熱量を加えないと蒸発しないため、真空排気時間を短縮するためには、水分の除去を目的としたベーキングの操作が必要となる。ベーキングの方法として一般的に行なわれているのは、クライオスタットの周囲にベルトヒータを巻き付けたり、赤外線ランプ等で加熱しつつ真空排気する方法である。小型のクライオスタットでは全体を乾燥炉の内部に入れ、外部から

図6 多層断熱材の露点

真空排気することもある。

露点の低い不活性ガス（窒素、アルゴンなど）を加熱しながら真空槽の一方から流し込み、多層断熱材の表面を洗うように流し他方の口から放出して脱湿する方法は液化窒素や液化アルゴンの大型タンクを設置している所では非常に有効である。この方法では放出口でガスの露点をモニタしておけば、脱湿の程度が定量的に把握できる。図6は反射材として1,000 mm×900 mmのアルミ蒸着マイラを30枚、スペーサとして1,000 mm×900 mmのナイロンネットを31枚交互に重ね、内径150 mmのステンレス円筒容器に設置した。この時一方から液化窒素をガス化した乾燥ガスを流し、他方から大気に放出した。入口气の温度をパラメータとして、出口側の露点の変化を測定した例である。当然のことながら温度の高いガスを流せば脱湿の効果が大きいことを示している。

一方クライオスタットの使用上、試料の交換などで真空断熱部をたびたび大気に露出させる構造のものがある。このようなクライオスタットでは多層断熱材の取付部にヒータを設置しておき、ベーキング時に通電し内部から直接加熱できるようにしたものもある。

ベーキングの温度は高めれば高いほど、またベーキングの時間も長ければ長いほど有効である。しかしクライオスタットの構成材料のなかには、ネオプレンゴム、マイラーシート、各種電気絶縁物のように耐熱温度の低い材料が多く使用されていること、時間経過に従い効果が少なくなることから、通常80°C前後の温度で、10時間以上、大型装置では50時間程度のベーキングが行なわれる。

図7 低温における各種気体の蒸気圧⁵⁾

6. クライオポンプ作用

クライオスタットの真空系は、極低温冷却運転時にはヘリウム槽をはじめ低温シールド板の表面がクライオパネルとなり、残留ガスを凝縮凍結して圧力が下がる。(図7参照)、しかしこの凝縮凍結した固体は、何らかの影響でクライオパネルの温度が上昇した場合、急激に気化して真空槽の圧力上昇を起こす恐れがある。このため、先に述べたアウトガスが大量に真空系内に残った状態で、強引に冷却を開始することは真空トラブルの芽を残すことになる。また凝縮凍結した固体が低温表面を覆うため、表面の輻射率が大きくなり熱侵入量が予想外に大きくなる可能性がある。

クライオポンプ作用による排気速度は、次式のように理論的な排気速度 S_{th} が気体分子の運動論から導かれて

$$S_{th} = C_g \cdot A \cdot (RT/2\pi M)^{0.5} \quad (3)$$

ここで、 C_g :凝縮係数でガス分子がクライオパネルに衝突して捕獲される割合で、He 温度面ではほぼ1に近い、 A :クライオパネルの面積、 R :ガス定数、 T :ガスの温度、 M :ガスの分子量である。

クライオスタットは室温から冷却を開始するので、ガスの温度を 300 K と仮定すると理論的には排気速度 S_{th} は単に分子量 M のみの関数となる。クライオスタット内のアウトガスは、まず液体窒素で冷却されたシールド面 (78 K) で水分と炭酸ガスが、つぎにヘリウムガスシールド面 (20 K) で酸素、窒素、アルゴンが、最後

図8 MRI用SCMの構造

1:液体ヘリウム注入口、2:破壊板、3:安全弁、4:断熱支持材、5:ヘリウム槽、6:窒素槽、7:超電導コイル、8:真空槽、9:熱シールド、10:シールド冷却管、11:補正用超電導コイル

に液体ヘリウム冷却面 (4.2 K) で水素がそれぞれ凝縮する。このときの主なアウトガスの排気速度は冷却面 1 cm^2 について水素 ($M=2.016$) で 44 l/s 、水分 ($M=18.016$) で 15 l/s 、また窒素 ($M=28.013$) で 12 l/s となる。クライオポンプの利点は大きな排気速度と超高真空が得られ、しかも清浄なことである⁵⁾。

7. クライオスタットの例

クライオスタットの実例として、「核磁気共鳴イメージングシステム用超電導磁石 (MRI用SCM)」のクライオスタット製作の過程におけるベーキングと真空排気について紹介する。

MRI用SCMは⁶⁾、図8に示す構造のソレノイド型電磁石で、中央の常温磁場空間に均一な磁界を発生させる専用クライオスタットである。寸法は直径 $1,650 \text{ mm}$ × 長さ $2,400 \text{ mm}$ × 高さ $2,400 \text{ mm}$ 、中心部の常温空間直径 910 mm 、総重量は約 6 トン、ヘリウム槽の重量は約 2 トンである。各構成部品は耐真空リークを考慮して全溶接構造とする。ヘリウム槽は超電導コイルおよび補正コイルを収納するとともに長期間液体ヘリウムの補給なしで運転できるように $200 \sim 300 \text{ l}$ 貯液できる。またヘリウムの蒸発ガスと液体窒素でそれぞれ冷却された熱シールドおよび多層断熱材で、極低温部への放射による熱侵入量を軽減する。断熱支持材はヘリウム槽、窒素

表2 MRI用SCMの仕様

磁場の強さ	1.5テスラ
磁場の均一度	1×10^{-5} 以下 (35 cmDSV)
磁場の安定度	1×10^{-7} /Hr 以下
L He の蒸発量	0.4 l/Hr 以下
L N ₂ の蒸発量	0.8 l/Hr 以下

表3 MRI用SCM 真空槽部の仕様

項 目	材 料	表面積 m ²
真 空 外 槽	SUS304	20
熱シールド板	SUS304	24
	Cu	12
多層断熱材	Al 蒸着マイラ	546
	ナイロンネット	564
ヘリウム槽	SUS316L	16
表 面 積 合 計		1182
真 空 槽 容 積	1.4 m ³	

槽、熱シールドなどの極低温部の重量を、常温部から支持するもので、FRPなど、熱伝導率が小さく、強度の高い材料を用いる。

断熱真空槽はクライオスタットの冷却前に弁を締め切り、真空排気ポンプから分離する。その後は内部が冷却されている限り真空排気は行なわない。表2にMRI用SCMの仕様を、表3にこのクライオスタットの真空槽を形成している部分の材料、表面積および空間の容積を示す。

MRI用SCMクライオスタット製作の最終工程で、真空槽の総合リークテストを行なう。ヘリウムリークデテクタを使用するが、最高の感度で安定に動作させるためには真空槽の圧力を 10^{-4} Torr程度にする必要がある。一方真空槽部は表3のように多層断熱材の施工によって表面積が非常に大きい。付着している水分の量も多いと推定されたので、はじめに一定時間加熱窒素ガスと赤外線ランプの組合せで脱湿作業を行なった後、真空排気を開始した。しかし圧力降下が 10^{-3} Torr台で飽和する傾向が出たので、再度脱湿作業を行なった。

図9にベーキングと真空排気の構成を示す。赤外線ランプ(500 W×6個)でクライオスタットの内筒を加熱する。脱湿作業は昼間(9:00~17:00)に液化窒素タンクからガス化した窒素を20 kWの電気ヒータで100°Cに加熱し、真空槽端板の真空フランジから流し込み、反対側の端板の真空フランジから放出する。この時の窒素ガ

図9 ベーキングと真空排気の構成

1:電気ヒータ, 2:窒素ガス注入口, 3:クライオスタット, 4:真空ポンプ, 5:赤外線ランプ, 6:窒素ガス放出口

図10 MRI用SCM 真空排気特性

A:ベーキング後, B:再度ベーキング後, C:理想容器として計算, D:多層断熱材のアウトガス量から計算, E:ベーキングなしの真空排気特性

スの流量は約30 Nm³/Hである。真空排気作業は夜間(18:00~8:00)に3,000 l/mのロータリポンプで粗引きを行ない、約0.1 Torrで300 l/sの油拡散ポンプを作動させた。以上のベーキング時間は昼間だけ加熱脱湿するという製作現場の都合により設定しているので必ずしも最適なものではないが、加熱脱湿の合計16 Hr、全ベーキング時間44 Hrでリークテストが可能な圧力となっ

た。

真空排気特性を図10に示す。曲線Aが加熱窒素ガスと赤外線ランプでベーキングした後の圧力降下で、曲線Bは再度ベーキング後のものである。これに対してベーキングの効果を確認するための計算と実験を行なった。曲線Cはアウトガスの無い理想容器として真空ポンプの排気速度から計算したもの、曲線Dは多層断熱材のアウトガス量（図5の曲線D）を用いて計算したものである。ここではロータリポンプで0.1 Torrに下げるには時間が長くなるので、0.2 Torrで油拡散ポンプを作動させるものとした。また曲線EはMRI用SCMの他のクライオスタットにおいてベーキング無しで真空排気を続けた場合の測定例で 5×10^{-4} Torrに達するのに200時間を要した。これらのことから、ベーキングが真空排気時間の短縮、すなわちクライオスタット製作工程の短縮に有効であることがわかる。

8. おわりに

クライオスタット製作時の問題点の一つとして、構成材料からのアウトガス量の多いことがあげられる。それは耐真空容器としてのリークテストに要する時間が長くなるからである。ここでは材料からのアウトガス量の測定例と、アウトガス量を早く、容易に減少させるためのベーキングについて、製作現場での一手法を紹介した。諸兄の御参考になれば幸いである。

〔文 献〕

- 1) H. E. G. Pitt: Vacuum **17** (1967) 649
- 2) I. Marklund, H. Danielsson: Vacuum **16** (1966) 365
- 3) A. P. M. Glassford, C. K. Liu: J. Vac. Sci. Technol. **17** (1980) 696
- 4) 杉山康夫他：真空ハンドブック（日本真空技術KK, 1978）p. 74
- 5) 信貴豊一郎他：低温工学ハンドブック（内田老鶴圃新社, 1981）p. 355
- 6) 山田忠利：画像診断 **5** (1985) p. 82