ステンレス鋼の放出ガス速度に及ぼす ベーキング温度の影響*

尾高 憲二**・石川 雄一**・古瀬 宗雄**

(昭和60年12月27日 受理)

Effect of Baking Temperature on Outgassing Rate of a Stainless Steel

Kenji ODAKA, Yuuichi ISHIKAWA and Muneo FURUSE

(Mechanical Engineering Research Lab.,
Hitachi Ltd., Tsuchiura, Ibaraki)

(Received December 27, 1985)

1. はじめに

ステンレス鋼からの放出ガスを低減する方法として、ベーキング(真空加熱脱ガス)が一般に用いられる。その温度が高いほど、放出ガス速度は小さくなるといわれているが、処理に必要な時間及び加熱のエネルギーが増加する。従って、装置が必要とする圧力に応じてベーキング温度を選択することが望ましいが、このためにはベーキング温度と放出ガス速度との関係を、定量的に把握することが必要となる。また、真空排気とベーキングを繰り返すと容器が枯れるといわれるが、この現象は広く知られているにもかかわらず、その特性については放出ガス速度が減少するという以外は、ほとんど知られていない。この枯れるという現象の特性を調べることによって、ステンレス鋼からのガス放出のメカニズムを理解する手掛りを得る可能性がある。これらの問題を明らかにするため、材質及び表面処理が等しい試験容器を3個製作し、それぞれベーキング温度を変化させて放出ガス速度を測定した。

2. 実験方法

実験は、小型の試験容器の放出ガス速度を、スループ

ット法を用いて測定した。試験容器は、Table 1に記すように、真空溶解を1回行ったSUS316Lで製作し、表面洗浄は電解研磨を行った。ステンレス鋼の化学成分をTable 2に示す。容器No. 3は、胴部(φ250)にコンフラットフランジを溶接して容器として完成した後、 10^{-4} Paの真空炉中で450°C×30 hのベーキング処理(これを我々は部品ベーキングと呼んでいる)を行った。容器の大きさはφ250×500で、内表面積は封止フランジを含めて約0.5 m²であった。

放出ガス速度の測定法については、詳細を別稿¹⁾に記したので、ここでは省略する。

3. 結果と考察

3.1 150°C ベーキング

試験容器No. 1の放出ガス速度の測定結果を、Fig. 1に示す。ベーキングの温度及び時間を含めた排気試験の経過を、図の上部に示した。排気試験は5回行った。各排気試験において、排気開始からベーキングを行うまでの、室温(23±3°C)における放出ガス速度の時間変化を(a)に、ベーキング後の放出ガス速度の変化を(b)に示す。(b)では、加熱停止時刻を基準($t=0$)として時間経過を示した。

まず(a)の室温での放出ガス速度をみてみる。第1回排気試験の放出ガス速度①は、第2回排気試験以後(②～⑩)に比べて大きな値であり、さらに、 10^4 s付近で折

* 昭和60年11月7日 第26回真空に関する連合講演会で講演(7Aa-10)

** 株式会社日立製作所研究所(茨城県土浦市神立町)

Table 1 Test Chambers were Made of Type 316L Stainless Steel Remelted in Vacuum and Electro-polished

Test Chambers	Material	Surface Treatment	Prebaking 450°C × 30 h	Temperature of in situ baking
1	Type 316L SS remelted in vacuum	Electro-polished	—	150
2			—	250, 150
3			○	250, 150

Table 2 Chemical Composition of Type 316L Stainless Steel

Element	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo
wt. %	0.010	0.40	1.96	0.010	0.005	12.23	16.37	2.22

Table 3 Values of constants A and B in eqn. (1)

Chamber	Measurement	A	B
1	2nd	2.46×10^{-2}	1.06
	3rd	9.33×10^{-2}	1.31
	4th~5th	1.26×10^{-2}	1.18
2	1st	1.48×10^{-2}	1.04
	2nd~5th	5.50×10^{-2}	1.30
3	1st	4.47×10^{-3}	0.96
	2nd~3rd	5.50×10^{-2}	1.30

Fig. 1 Effect of Baking at 150°C on Outgassing Rate of the Test Chamber (Type 316L Stainless Steel without Prebaking).

れ曲っている。1 h の大気リークの後、第 2 回排気試験を行うと、放出ガス速度②は①に比べて約 1/3 に小さくなり、次式に従って時間とともに直線的に減少している。

$$q = At^{-B} \quad (1)$$

ここで A, B は定数である。Fig. 1 から計算した A, B の値を Table 3 に記す。B は殆どの場合に 1 より少し大きな値である。室温における排気のみで放出ガス速度が①から②に大きく減少することから、①では脱離の活性化エネルギーが小さく、室温排気で容易に脱離するガス(多分 H₂O であろう)が多量に吸着していると考えられる。①の曲線が途中で折れ曲る原因は、この脱離の活性化エネルギーの小さいガスの吸着量の変化によるものであろう。この後、ベーキングと大気リークを繰返すごとに、室温での放出ガス速度は⑥から⑧へと減少している。しかし、第 5 回排気試験の⑩は、第 4 回排気試験の⑧と全く同じ値となった。なお、ここには示していないが、さらに大気リーク及び排気、ベーキングを繰返しても、室温での放出ガス速度が変化しないことを確認した。

次に、(b)のベーキング後の放出ガス速度変化をみてみる。第 2 回排気試験では、3 回にわたって合計 42 h の 150°C ベーキングを行った。各ベーキングの後、容器の温度の低下とともに、放出ガス速度は急激に減少するが、室温になった後、 $t > 5 \times 10^4$ s (約 14 h) で放出ガス速度の減少は非常に緩かになり、殆ど一定値となった。この値を、ベーキング後の放出ガス速度 q_{AB} と呼ぶことにする。1 回目のベーキング後③の $q_{AB} = 1.7 \times 10^{-9}$ Pam³/sm² に比べ、2 回目のベーキング後④は $q_{AB} = 1.2 \times 10^{-9}$ Pam³/sm² で約 70% に減少している。しかし、3 回目のベーキング後⑤は、 $q_{AB} = 1.1 \times 10^{-9}$ Pam³/sm² で殆ど減少していない。ところが、一度大気リークした後の第 3 回排気試験で、150°C × 14 h のベーキングを行った後の⑦では、 $q_{AB} = 4.1 \times 10^{-10}$ Pam³/sm² と⑤の 40% にまで大幅に減少した。この後、大気リーク及び排気、ベーキングを 2 回繰返したが、 q_{AB} は 3.6×10^{-10} Pam³/sm² で殆ど減少しなかった(⑨及び⑪)。これによって、第 3 回排気試験のベーキングで容器はいわゆる「枯れた」状態になったと考えられる。

Fig. 1 の結果を、排気時間の累積値を横軸にとってプロットしなおしたものが Fig. 2 である。ベーキング後の放出ガス速度 q_{AB} はおよそ $t^{-1/2}$ (図中の一点鎖線) でゆるやかに減少している。そして、第 2 回排気試験と第 3 回排気試験との間で、不連続的に減少しているのが明瞭に認められる。このように、大気リーク後の第 3 回排気試験のベーキングによって、放出ガス速度が大幅に減

Fig. 2 Relation between Outgassing Rates and Cumulative Pumping Time.

少したことは、ベーキングの作用として、表面及びその近傍に吸着したガスに、熱エネルギーを与え脱離を促進することのみを考えたのでは説明できない。容器の表面状態が変化して、放出ガス速度の小さい状態が形成されたと推測される。このとき、ベーキングとともに大気リークが大きな役割を果たしており、両者の組合せが表面改質の作用を有するものと考えられる。そして、容器が枯れた後は、排気試験を繰返しても室温における放出ガス速度、並びにベーキング後の放出ガス速度 q_{AB} は、安定して同じ値が再現される。このことから、容器が枯れるということは、放出ガス速度の小さい安定した表面状態が、つくり出されることであると考えられる。

3.2 250°C 及び 150°C ベーキング

試験容器 No. 2 の放出ガス速度の変化を、Fig. 3 に示す。排気試験は 5 回行った。第 1 回及び第 4 回の排気試験では 250°C のベーキングを行った。他の排気試験では、150°C のベーキングを行った。

(a)に示す室温での放出ガス速度は、いずれも式(1)に従って時間とともに直線的に減少している。Fig. 3 から計算した A, B の値を Table 3 に併せて記す。第 1 回排気試験の放出ガス速度①は、第 2 回排気試験以後(③～⑧)に比べて 2 倍以上の大きな値であり、かつ B の値

Fig. 3 Effect of Baking at 250°C and 150°C on Outgassing Rate of the Test Chamber (Type 316L Stainless Steel without Prebaking).

が小さく放出ガス速度の減少がゆるやかである。一度ベーキング及び大気リークを行った第2回排気試験以後は、排気試験と大気リークを繰返しても放出ガス速度は同じ値を示した (③～⑧)。

(b)のベーキング後では、第3回排気試験まで排気及びベーキングを繰返す毎に②、④、⑥の順に放出ガス速度が減少したが、それ以後は大気リーク及び排気試験を繰返しても、ベーキング後の放出ガス速度 q_{AB} は同じ値となった。従って、第3回排気試験のベーキングで容器が枯れたことがわかる。枯れた後に、再度250°Cでベーキングして大気リークし、続いて150°Cで延べ75 hのベーキングを行ったが、 q_{AB} は変化しなかった (⑨、⑩)。この結果は、3.1に述べた枯れた容器の表面は、放出ガスの少ない安定した状態にあるという考えを支持するものである。

3.3 450°C、250°C及び150°Cベーキング

試験容器 No. 3の放出ガス速度の変化を Fig. 4に示す。この容器は、450°Cで部品ベーキング処理を行った

もので、排気試験におけるベーキング温度は250°C及び150°Cであった。排気試験は、試験容器 No. 2の第1回から第3回の排気試験と全く同じ経過で、3回行い部品ベーキングの効果を調べた。

(a)に示した室温での放出ガス速度の変化の様子は、試験容器 No. 2の場合とよく似ている。第2回及び第3回の排気試験の放出ガス速度 (③及び⑤) が同じ値であるだけでなく、容器 No. 2並びに容器 No. 1の枯れた状態における放出ガス速度とよく一致する。この結果から、枯れた状態における室温排気の放出ガス速度は、150°Cから450°Cのベーキング温度の範囲で変化しないことがわかる。

(b)に示したベーキング後の放出ガス速度をみると、第2回の排気試験 (④) で、容器が枯れた状態になっている。第3回排気試験では、150°C×6 hの短時間ベーキングで 1.3×10^{-10} Pa m³/sm² という、微小な放出ガス速度が得られた。この値は、容器 No. 2に比べて1/2である。これが450°C×30 hの部品ベーキングの効果であ

Fig. 4 Effect of Baking at 250°C and 150°C on Outgassing Rate of the Test Chamber (Type 316L Stainless Steel with Prebaking).

Fig. 5 Relation between Maximum Baking Temperature T_{Bmax} and Outgassing Rate after Baking q_{AB}^* for Thoroughly Degassed Type 316L Stainless Steel.

り、言い換えればベーキングの最高温度450°Cと250°Cとの違いである。

上に述べた3つの容器の枯れた状態におけるベーキン

グ後の放出ガス速度 q_{AB}^* の相違は、ベーキングの最高温度 T_{Bmax} に起因すると考えられる。 T_{Bmax} に対して q_{AB}^* をプロットした結果を Fig. 5 に示す。 T_{Bmax} が大きくなるに従い、 q_{AB}^* が直線的に減少するのがわかる。 図中の直線は、

$$\log q_{AB}^* = -1.87 \log T_{Bmax} - 4.51 \quad (2)$$

である。

4. ま と め

真空溶解した SUS316L の試験容器の放出ガス特性を測定し、次の結果を得た。

(1) 排気、ベーキング及び大気リークの一連のサイクルを2回ないし3回繰返すと、容器は枯れた状態となった。枯れた後は、上記の排気サイクルを繰返しても、室温での放出ガス速度及びベーキング後の放出ガス速度のいずれも、安定して一定の値を示した。

(2) 枯れるためには、ベーキングとともに大気リークが不可欠の要素である。枯れる過程は、放出ガス速度の小さい安定した表面状態をつくり出す、表面改質の過程であると考えられる。

(3) ベーキング最高温度 T_{Bmax} が高いほど、枯れた状

態でのベーキング後の放出ガス速度 q_{AB}^* が小さくなる。
両者の間には、 $423\text{ K} \leq T_{B\max} \leq 723\text{ K}$ の範囲で、ほぼ次の関係式が成り立つ。

$$\log q_{AB}^* = -1.87 \log T_{B\max} - 4.51$$

謝 辞

実験結果の解釈に当って、有益な御助言をいただい

た、高エネルギー物理学研究所石丸教助、並びに同小林助教授に深く感謝いたします。

〔文 献〕

- 1) 石川, 尾高, 古瀬: 真空, 投稿中 (7 Aa-8)