電解研磨法および乾式切削法によるアルミニウム合金製 箱形真空容器の真空特性

多井 勉*・室尾 洋二**・今野 収***

(受付1989年12月1日, 掲載決定1990年2月3日)

Vacuum Property of Aluminum Alloy Chamber Treated
with Electropolishing and Machining in Dry Atmosphere

Tsutomu OHI, Youzi MUROO and Osamu KONNO

*(Superconducting & Cryogenic Technology Center, Kobe Steel Ltd., Kobe)

** (New Product Development Department, Kobe Steel Ltd., Kobe)

*** (Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, Sendai)

(Received December 1, 1989, Accepted February 3, 1990)

Two aluminum alloy chambers designed to hold the magnets and electrodes of a pulse beam stretcher were manufactured. The inner surface of one chamber was treated with electropolishing. The inner surface of the other chamber was treated with machining in a dry atmosphere.

The electropolished chamber contained hydrate at the surface and showed a high outgassing rate of $1 \times 10^{-9} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 / (\text{s} \cdot \text{m}^2)$ after a 150°C , 24-hour bakeout. The chamber machined in the dry atmosphere contained less hydrate at the surface than the electropolished chamber did and showed a low outgassing rate of $1.5 \times 10^{-10} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 / (\text{s} \cdot \text{m}^2)$ after a 150°C , 24-hour bakeout.

1. はじめに

パルス電子ビームストレッチャーは真空中で使用する電磁石や電極を必要とする。これらの電磁石や電極を納める真空容器にはガス放出量が小さく、かつ上部が開閉可能な構造が要求される。真空容器はその大きさから圧延材を使用しなければならない。しかし圧延材の表面は水分や油を含む酸化膜で覆われており、表面加工処理が必要となる。この加工処理のために種々の方法が試みられている^{1,2)}が、大型真空容器 ($1 \text{ m} \times 1 \text{ m} \times 2 \text{ m}$) を製作する場合には、それらの加工処理方法を用いるのは困難であった。今回この問題を解決するために金線ガスケットを使用したAl製真空容器を湿式研磨法(電解研磨法)

と乾燥窒素雰囲気中での切削法(乾式切削法)で試作し、両者に対して表面の組成分析とガス放出速度の測定を行った。

2. 真空容器

試作した真空容器の構造をFig. 1に示す。真空容器はパルス電子ビームストレッチャー用電磁石、および電極を収納する真空容器を想定して上蓋を開閉できる構造になっている。内容積は約 0.13 m^3 、内表面積は 1.8 m^2 である。

電解研磨法により製作した真空容器の壁材は、内側は散乱電子等によるガス放出量を少なくする³⁾ために99.99%Al(カント法による分析値: Al 99.993, Fe 0.003, Si 0.003, Cu 0.001重量%)であり、外側は機械的強度を考慮してAl-Mg系合金A5052-Oからなるクラッド板を用いた。乾式切削法により製作した真空容器の壁材は、Al-Mg系合金A5052-H112を用いた。また上蓋の

* 神戸製鋼所技術開発本部(神戸市西区高塚台1丁目5-5)

** 神戸製鋼所機械エンジニアリング事業部(神戸市中央区脇浜町1丁目3-18)

*** 東北大学理学部(仙台市三神峯一丁目2番1号)

Fig. 1 Structure of the aluminum alloy chamber.

Fig. 2 Manufacturing process of the electropolished aluminum alloy chamber.

フランジ材は金線を真空シール材として使用するために、ビッカース硬度が120以上得られるAl-Cu系合金A2219-T852を用いた。

次に電解研磨法による真空容器の製作工程をFig. 2に、乾式切削法による真空容器の製作工程をFig. 3に示す。これらの加工法による表面粗さの測定値はFig. 4に電解研磨法を、Fig. 5に乾式切削法を示す。電解研磨法による製作は溶接開先を加工した後、99.99%Alの表面を切削し、圧延による変質層を除去した。その後クラッド板をTIG溶接し、トリクロロールエタンで脱脂洗

Fig. 3 Manufacturing process of the machined aluminum alloy chamber.

Fig. 4 Roughness of the electropolished aluminum surface.

Fig. 5 Roughness of the machined aluminum alloy surface.

浄後、99.99%Alの表面を電解研磨した。電解研磨終了後水道水と蒸留水による洗浄を行い、窒素ガス雰囲気中

Fig. 6 Outgassing rate of the electropolished aluminum chamber.

Fig. 7 Outgassing rate of the machined aluminum alloy chamber.

Fig. 8 AES depth profile of the electropolished aluminum. Sputtering speed of Ar ion is 75 Å/min.

Fig. 9 AES depth profile of the machined aluminum alloy. Sputtering speed of Ar ion is 25 Å/min.

で乾燥させた。

乾式切削法による製作は溶接開先を加工した後、切削油を使用せずに圧延板の内表面側を切削した。この切削雰囲気露点を下げるためにダイヤモンドバイトの刃先に露点 -60°C 以下の乾燥窒素を吹き付けた。表面加工後にTIG溶接し、その後トリクロロエタンで脱脂洗浄した。

3. 測定結果

3.1 ガス放出速度

試作した容器の真空特性を評価するためにガス放出速度をスループット法⁴⁾により測定した。真空容器側の圧力を $P_1(\text{Pa})$ 、真空ポンプ側の圧力を $P_2(\text{Pa})$ 、オリフィスのコンダクタンスを $C(\text{m}^3/\text{s})$ 、真空容器の内表面積を $A(\text{m}^2)$ とすると、ガス放出速度 $q(\text{Pa}\cdot\text{m}^3/(\text{s}\cdot\text{m}^2))$ は

$$q = (C/A)(P_1 - P_2) \quad (1)$$

で与えられる。本測定における C は、窒素換算で $3.2 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{s}$ であった。

電解研磨法により製作した真空容器のガス放出速度の測定結果をFig. 6に、また乾式切削法により製作した真空容器のガス放出速度の測定結果をFig. 7に示す。室温で20時間排気した後、 150°C 、24時間のベーキングを行った。電解研磨法の場合、ベーキング終了後72時間経過すると $1 \times 10^{-9} \text{ Pa}\cdot\text{m}^3/(\text{s}\cdot\text{m}^2)$ のガス放出速度が得られた。一方乾式切削法の場合、ベーキング終了後24時間経過すると $1.5 \times 10^{-10} \text{ Pa}\cdot\text{m}^3/(\text{s}\cdot\text{m}^2)$ のガス放出速度が得られた。

3.2 表面分析

真空容器に使用した材料の試験片に両表面加工法を施し、Arイオンでスパッタリングしながらオージェ電子分光(AES)、X線光電子分光(XPS)により表面層の

Fig. 10 XPS spectra of the electropolished aluminum.

Fig. 11 XPS spectrum of the machined aluminum.

元素と深さ方向の濃度分析を行った。AESはPERKIN ELMER社製のPHI-4300を、またXPSは島津製作所製のESCA750を用いた。

表面層の酸化膜厚さをAESで分析した。試験片は電解研磨法については99.99%Alを、乾式切削法についてはA5052-H112を用いた。電解研磨したAl材のAESによる深さ方向の元素分析結果をFig. 8に、また乾式切削したAl材のAESによる深さ方向の元素分析結果をFig. 9に示す。

酸素のピーク値が最大値の50%になる箇所を酸化物とバルク金属の境界とする³⁾。一方Arイオンのスパッタリングの加速電圧は3kVで、試料電流は電解研磨法の場合には2mA/m²、乾式切削法の場合には0.6mA/m²とした。電解研磨法の場合と同じスパッタリング条件で銅に対して290Å/minのスパッタリング速度を実測し

Fig. 12 O1s spectra of the electropolished aluminum.

Fig. 13 Al2p spectra of the electropolished aluminum.

た。Arイオンのスパッタリング収率は次のように測定されている⁶⁾。

Cu: 4.3

Al: 1.3

Al₂O₃: 1.1

このスパッタリング収率をもとに求めると、電解研磨法によるAl₂O₃に対するArイオンのスパッタリング速度は75Å/minになり、乾式切削法の場合25Å/minとなる。酸化物の境界を決めるスパッタリング時間とArイオンのスパッタリング速度から酸化膜の厚さは電解研磨法の場合には110Å、乾式切削の場合には60Åの結果が得られた。

次にこの加工法によってAlの表面に生成される水酸化物をXPSにより分析した。試験片は合金成分の影響を除くために99.99%Alを用いた。電解研磨したAl材のXPS分析結果をFig. 10に、また乾式切削したAl材のXPS分析結果をFig. 11に示す。XPS装置のAl₂O₃に対するArイオンのスパッタリング速度は10~15Å/minである。電解研磨した表面層からはAl, O, C以外に電解研磨液に起因すると考えられるCr, Pが検出された。1分後のスパッタリング面ではCr, Pは検出されず、AlとOが主に検出された。一方乾式切削した表面

Fig. 14 Curve fitting of O1s spectra for the electropolished aluminum.

層では Al, O, C 以外の元素は検出されなかった。電解研磨した99.99%Al の O1s スペクトルの深さ方向の変化を Fig. 12 に、また Al2p スペクトルの深さ方向の変化を Fig. 13 に示す。深さ方向に酸化物が少なくなっているため、O1s スペクトルの強度は深さ方向に小さくなっている。Al2p スペクトルは表面で酸化物状態の Al のピークが顕著であるが、深さ方向に減少し、金属 Al のみが検出されるようになる。

Fig. 12 に示すように O1s スペクトルは強度の大きな 1 本のピークとなっている。そのピークの半値幅が大きいことを考慮し、波形分離法⁷⁾によって 2 成分に分離した。O1s スペクトルを波形分離した結果を Fig. 14 に示す。アルカリ性浴中で陽極酸化した Al を XPS 分析した測定例⁸⁾では、O1s の束縛エネルギーは次のように化学シフトしている。H と結合した O、すなわち水酸化物に基づくピークが 534 eV、また金属と結合した O、すなわち酸化物に基づくピークが 532.4 eV に検出される。Fig. 14 に示すように電解研磨した 99.99%Al においても同様に波形分離でき、高エネルギー側に H と結合した O、すなわち水酸化物に基づくピークが検出され、深くなるにつれてその量は減少している。

4. 考 察

加工法の異なる Al 表面の酸化膜厚さを AES により求めた。その結果、電解研磨法による酸化膜の厚さは乾式切削法による厚さの約 2 倍である 110 Å になった。このために電解研磨法により製作した真空容器のガス放出速

Fig. 15 Depth profile of ratio (O/Aloxide) for the electropolished aluminum.

Fig. 16 Depth profile of ratio (O/Aloxide) for the machined aluminum.

度が大きくなったと考えられる。一方乾式切削法により製作した真空容器はその酸化膜が 60 Å と薄いことから、ガス放出速度が小さくなったと考えられる。

次に電解研磨により生成した酸化物の組成を調べるために、先に示した Fig. 12 と Fig. 13 の結果を用いて O と酸化物状態の Al の濃度比を求めた。電解研磨した Al 材の O と酸化物状態の Al の濃度比の深さ方向の変化を Fig. 15 に、また乾式切削した Al 材の濃度比の変化を Fig. 16 に示す。これらの濃度比は O1s スペクトルのピーク面積と Al2p スペクトルの酸化物状態のピーク面積をイオン化断面積で割って求めた。電解研磨法の濃度比は最表面において 3.6 と大きな値になり、深くなると 1.5 となった。一方乾式切削法の濃度比は最表面において電解研磨法よりも小さく、2.5 となり、また濃度比が 1.5 になる深さも電解研磨法に比較してより表面に近くなった。

O と酸化物状態の Al の濃度比はアルミニウム酸化物の種類により異なると考えられる。Al₂O₃ の場合には 1.5、AlO(OH) の場合には 2、Al(OH)₃ の場合には 3 となる。この値から考察すると、電解研磨法、および乾式切削法により製作した真空容器の表面層には共に水酸化物が生成している。その厚さは電解研磨法の方が乾式切削法よりも厚い。また表面に生成した水酸化物の種類は先の測定結果から Al(OH)₃ と推察できる。

以上を総合すると電解研磨法は湿式研磨法であるため水酸化物を生成し、酸化膜が厚くなり、ガス放出速度が大きくなることが確認された。これに対して乾式切削法は水酸化物の生成量が少なく、酸化膜が薄くなり、ガス放出速度が小さくなったものと考えられる。

6. ま と め

真空仕様の電磁石や電極を入れる真空容器は上部が開閉可能な構造で、ガス放出量の小さいことが要求される。しかしながらこれまでは大型の真空容器に対する表面加工処理技術に問題があり、またその表面の組成分析も不十分であった。本研究では箱型の真空容器を2種類の材料（クラッド板（99.99%A1+A5052-O）とA5052-H112）により製作し、ガス放出速度を測定した。試験材料として99.99%A1とA5052-H112を選び、電解研磨法と乾式切削法による酸化膜厚とその組成についてAESとXPSにより分析した。その結果、ガス放出速度は使用した材料の種類や表面の粗さよりも表面の酸化膜厚とその組成に影響される事を確認した。また試作した真空容器のガス放出速度は材料の表面を乾式切削する加工の方が湿式処理法である電解研磨法よりも約

1桁低く、大型の真空容器を製作する上で簡単、かつ優れていることが明らかになった。

今後電子加速器や蓄積リングで生じている散乱電子や放射光による局部加熱でのガス放出量増加とその分圧測定や真空材料への影響を調べる。これらの試験は加速器の性能を向上させることに役立つと考える。

〔文 献〕

- 1) 宮本正夫, 伊藤隆夫, 小牧昭二郎, 成島勝也, 石丸肇: 真空, **28** (1985) 87
- 2) 末光眞希, 宮本信雄: 真空, **29** (1986) 375
- 3) 今野收: 核理研研究報告, **21** (1988) 110
- 4) 日本真空協会編:
真空材料におけるガス放出量の試験評価法に関する調査研究報告書 (1987)
真空材料におけるガス放出量の試験評価法に関する調査研究報告書 (II) (1988)
- 5) H. J. Mathieu, M. Datta and D. Landolt: J. Vac. Sci. Technol., **A3** (1985) 331
- 6) Y. Okazima: Jpn. J. Appl. Phys., **20** (1981) 2313
- 7) A. R. Stokes: Proc. Phys. Soc., **61** (1948) 382
- 8) 廣地通明, 吉村長蔵: 金属表面技術, **31** (1980) 596