研 究

蒸発源に TiC を用いたゲッターポンプ*

田 畑 三 郎**・岩 田 稔**

(昭和 36 年 4 月 14 日 受理)

A Getter Pump with Evaporation Source made of Titanium Carbide

Saburo TABATA and Minoru IWATA

(The Osaka Industrial Research Institute)

A TiC getter pump with evaporation source of TiC heater was made in order to evacuate a coating apparatus of mirror of 2.0m diameter.

According to previous report¹⁾ the TiC bars were inserted into the ordinary alumina crucible which was a reservoir of molten metal. This time Ti is used in a wire form and is fed constantly onto a TiC heater. The conclusions are as follows.

- 1) TiC is useful as Ti evaporating heater.
- 2) When an oil diffusion pump was operated as a fore pump, the compound rate of exhaustion was greatly affected by back diffusion of oil vapour. When the valve between the oil diffusion pump and the getter pump was appropriately opened, the rate of exhaustion was increased to a value 25 times as great as the rate when the valve was fully opened.
- 3) A getter pump is not only useful for very high vacuum apparatuses with metal seals, but also the conventional vacuum apparatus with synthetic rubber seals.

1. 緒 言

ゲッターイオンポンプは金属蒸発によるものとスパッタによるものの2種に分類される。前者はゲッター物質を加熱蒸発により、後者は sputtering によって蒸気化させゲッター効果を利用して排気容器内を高真空中に維持させる。金属蒸発に用いられるゲッター物質 (Ti, Ca, Ba, 等) は排気特性がガスによって異り選択的排気を行なう。又、いづれの物質の場合でも非活性ガスに対するゲッター効果は少ないのでイオンポンプ効果を併用してこれを取除いている。

蒸発法によるポンプはスパッタ法に比べてポンプに不可欠な性能、すなわち作動の安定性と長寿命の点でおとるにもかかわらず、現在なおこの欠陥を除くために多くの研究^{2,3,4)} がなされているのは同一排気速度に対するコストが後者に比べて安価であること、および小型で済むことに原因している。蒸発法によるポンプに用いられている電子衝撃法による蒸発源の改良について多くの研究

がなされ、その寿命と作動の安定性について種々の試みが行われている。吾々はかつて種々の金属の大量蒸着法の研究^{5,6)} において TiC を蒸発源に用いたが、同時に T の蒸発も試みた。TiC ヒータは Ti に対して耐食性よく蒸発源として有能であることを認めた。本文では蒸発法に属するゲッターポンプに TiC を直接加熱する蒸発源を用いた場合、(ゲッターには Ti を使用) の蒸発源の耐食性と形状および排気特性について検討した結果を報告する。ゲッターポンプに油拡散ポンプを併用した場合、酸素、窒素、空気に対する排気速度が著しく高められることは知られている。^{7,8)} 吾々の目的は 2.5m 反射鏡蒸着装置にゲッターポンプを設置してその排気能率を高めることである。ここではゲッターポンプに油拡散ポンプを協力させることを原則として実験を進めた。

2. 実験装置

ゲッターポンプ本体の概略を Fig. 1 に写真を Fig. 2 に示す。

蒸発源およびポンプ本体の特徴は次の通りである。すなわち

- 1) 真空シールは可動部分も含めて全て合成ゴムを用。

* 1960年10月応物関係連合講演会で発表

** 工業技術院 大阪工業技術試験所第3部

Fig. 1 Schematic diagram of getter-pump.

Fig. 2 Photograph of getter-pump.

Fig. 4 The TiC heater and water cooled electrodes.

Fig. 3 Feeding device of the wire.

いた。

- 2) Ti 線はローラによって捲取棒から引き出し 案内管によってヒータ面へ送る*。ローラは外部から変速装置によって駆動する。(Fig. 3)
- 3) ヒータ導入電極は直径1吋の真鍮棒でこれにターミナルを固定する。ターミナルは水で冷却している。

- 4) ヒータの熱消費 [1.6kW(400A)~3.5kW(700A)] が大きいので本体各部は水冷を行なう。特にシール部は効果的に水冷を施した。
- 5) ポンプ本体は 290mmφ×330mm の鉄 (Ni 鍍金) 製である。
- 6) TiC は 4.5×4.5×55mm の棒 2 本を用い、たがいの一端を接触させて他端をリードターミナルで保持する。(Fig. 4)

油拡散ポンプ (有効径 4 吋、分溜型、 10^{-5} mmHg における排気速度 170l/s) およびバルブ類は自製である。

真空計はペンニングゲージ (フィリップス社製) を用いた。Fig. 1 に示すごとく補助真空用側管の一端で測定した。

* 線材 (D=0.5mm) は焼鈍しない。捲取棒によるカーリングはあまり影響がなく、したがって Ti 線のヒータからの外れはほとんどなかったが、案内管と線材の溶着はこの機構では本質的にのがれることができない。然しヒータと案内管の距離を調節すれば支障はなかった。

3. 実験および考察

補助排気装置による到達真空度は 1.4×10^{-5} mmHg, ポンプ本体のリーク量は $< 1 \times 10^{-2}$ lusec である。

補助ポンプによる到達真空度で TiC ヒータを通电加熱する。6.5V, 350A で所要の蒸発温度が得られる。Ti の蒸発を開始すると約15秒以内は真空度が落ち、($3 \sim 7.5 \times 10^{-5}$ mmHg) 以後になると排気効果が現われて急激によくなる。Fig. 5 はその排気曲線の一例である。領域Aは補助ポンプの到達真空度、送り速度24mg/minで蒸発を開始すると放出ガスのために急激に落ち約15秒で 3×10^{-5} mmHg になるが、直ちに上り約50秒後 5.4×10^{-6} mmHg になる。ここからゆるやかなカーブを画いて約5分後 4.8×10^{-6} mmHg になり約20分後においてもほとんど変化しない。

送り速度を約30mg/min にして同様に行なうと到達真空度は徐々に向上して最良の場合約 2×10^{-6} mmHg になる。

ポンプ外壁の温度は 18°C から 25°C に上昇する。特に加熱の著しい導入電極のシール部、蓋、送り軸の部分を独立して水冷する。またターミナルの接触抵抗も昇温の原因であるのでなるべく小さくすると約 20°C で安定する。しかし到達真空度はほぼ 2×10^{-6} mmHg 以上にならない。

次にゲッターポンプを油拡散ポンプから絶縁させて作動する。すなわち 3.6×10^{-5} mmHg から 3.7×10^{-6} mmHg に向上したとき油拡散ポンプをバルブで閉じる。Tiの蒸発を続行すると約12分後 2.8×10^{-6} mmHg になる。しかしここから次第に真空度が落ち20分後に 3×10^{-5} mmHg, となり、更に劣化の傾向をたどる。ここでバルブを開くと瞬時によくなり 10^{-7} mmHg に入るが数分後には再び 3.7×10^{-6} mmHg に戻って安定する。バルブの開閉を繰返すと真空度は落ち、次に従前より向上し、そして再び閉じる前の真空度に戻る。

次にバルブの開閉を加減して拡散ポンプの排気コンダクタンスを変えて引いてみる。

今 1.2×10^{-5} mmHg で蒸発を始めると約4分後に 2.4×10^{-6} mmHg の到達圧力に到る。バルブを次第に閉じると真空度は徐々に向上し、ほとんど閉じ終る頃になると 7.1×10^{-7} mmHg になる。この場合の一例を Fig. 6 に示す。

5.1×10^{-5} mmHg で蒸発を始め約3.5分後 5.4×10^{-6} mmHg になったとき蒸発を続行しながらバルブを閉じてゆく。図の(a)はこの操作によって得られた領域である。(b)はバルブを完全に閉じた場合ゲッターポンプだけの領域である。そしてバルブを(a)の場合に等しく

Fig 5 Pump down curve for normal air when the valve was fully opened and the diffusion pump without baffle.

Fig. 6 Pump down curve for normal air when the valve was appropriately opened and the diffusion pump without baffle (region a), valve closed (region b) and again the valve was appropriately opened (region c), and pressure variation when the valve was closed and after opened in vicinity of final vacuum (region d).

開けると(c)の領域に入り約80分後には 6.6×10^{-7} mmHg に到る。バルブの開き具合を到達真空度が最良になるよう調節した場合である。このときの拡散ポンプの排気速度はバルブの有効断面積の比から見ると約 $S = 1/7$ に減少していることになる。

Fig. 7 Pump down curve for normal air when the valve was appropriately opened and the diffusion pump with baffle.

Fig. 5 と Fig. 6 の真空度線はバルブの開き具合の相異によって得られたものである。吾々の拡散ポンプはバルブの弁座をバッフル兼用にして特別なバッフルを装着していなかった。

Fig. 7 はバッフルを装着した場合の真空度曲線である。この場合バルブは約 $S = 1/2$ の状態に開いている。 $3.4 \times 10^{-5} \text{ mmHg}$ で蒸発を始め約40分後に $6.8 \times 10^{-7} \text{ mmHg}$ になった。

Fig. 6 と比較するとバッフルの効果が明らかである。ここでバルブ fully open, (全開) shutted (閉止) appropriately open (適度に開放) (いずれもバッフル付き) の場合のそれぞれの排気要素を考慮すると次の関係がなりたつ。

fully open (全開) の場合の合成排気速度を S_1 とすると

$$S_1 = S_d + S_g - (S_b + S_i) \quad (1)$$

ただし S_d ; 拡散ポンプの排気速度

S_g ; ゲッタポンプの排気速度

S_b ; 油の逆拡散により生ずる負の排気速度

S_i ; Ti蒸発の際放出ガスおよびポンプ系の真リーク, 放出ガスなどによる負の排気速度

Shutted (閉止) の場合の排気速度 S_2 は

$$S_2 = S_g - S_i \quad (2)$$

Appropriately open (適適度に開放) の場合の S_3 は

$$S_3 = S_g + S_d' - (S_b' + S_i) \quad (3)$$

ただし S_d' ; バルブコンダクタンスで決まる拡散ポンプの排気速度

S_b' ; バルブコンダクタンスで決まる逆拡散による負の排気速度

そして [1] [2] [3] はそれぞれの関係を保って真空度が向上する。 S_1, S_2, S_3 は既知のリーク量を与えて求めるべきであるが、一応各真空度における dp/dt 曲線から見掛けの排気速度として算出すると Fig. 8 の通りになる。

逆拡散による負の排気速度を含めた拡散ポンプの有効排気速度は [1] [2] および [3] [2] から得られる。すなわち fully open の場合

$$S_1 - S_2 = S_d - S_b = 1.0 \times 10^{-2} \text{ l/s } (4 \times 10^{-6} \text{ mm Hg において})$$

Appropriately open の場合

$$S_3 - S_2 = S_d' - S_b' = 2.5 \times 10^{-1} \text{ l/s } (4 \times 10^{-6} \text{ mm Hg において})$$

S_d と S_d' との間には有効断面積比から

$$S_d \div 2 S_d'$$

同様に

$$S_b \div 2 S_b'$$

の関係にあると考える。

Fig. 8 Apparent rate of exhaustion for normal air when the valve was fully opened (1), shutted (2), and appropriately opened (3), respectively.

かくして逆拡散による負の排気速度が約 $\frac{1}{2}$ に減ることによって拡散ポンプの有効排気速度は約25倍に増加したことになる。

ゲッタポンプに油拡散ポンプを併用する場合、拡散ポンプは単にコンダクタンスを考慮した排気速度でゲッタポンプに寄与しているのではなく、ゲッタポンプ内で生成しゲッタ効果を阻害す“poison”（炭化水素）を取り除くことによって排気効果を一層強めていると云われる⁷⁾。このように考えれば拡散ポンプは一方では“poison”を去除くが他方では逆拡散で入った油はヒータ面で分解し、これが“poison”となって逆にゲッタポンプの排気速度に負の効果を与えることは当然考えられる。

$S_2 = 0$ で到達真空度に達した場合、残留ガスは主に非活性ガスおよび炭化水素からなって真空度はこの分圧によって決まる。

バルブが **fully open** の場合 S_d と S_b はほぼ同じ量になるので有効速度($S_d - S_b$)は小さいが **Appropriately open** の場合は拡散ポンプの排気速度の減少より逆拡散による負の速度の減少が著しいので $S_d - S_b < S_d' - S_b'$ となり上述の如き排気特性を示すのであろう。

吾々のポンプはイオンポンプとして働かしていない。

ここで S_g のガス選択性の観点から Fig. 6 (d) 領域の現象について考察する。

(d) 領域では拡散ポンプをゲッタポンプから切離した場合しばらくしてバルブを開くと瞬時に従前の真空度より向上する現象を示す。

今、活性、非活性ガスはゲッタと拡散ポンプによって選択排気されていると考える。 S_a を活性、 S_i を非活性ガスに対する排気速度とすると S_g は

$$S_g = S_a + S_i$$

ただし

$$S_a = S_g + S_d'a - (S_b'a + S_{1a})$$

$$S_i = S_d'i - (S_b'i + S_{1i})$$

で表わされる。

Appropriately open の状態で到達真空度に達した場合ゲッタポンプの排気速度は大きく放出ガスおよびリークガスの活性分に見合うだけの排気速度をもつが、更に逆拡散による影響が減少しているために余力をもってこれらのガスを排気しているものとすれば

$$S_g \geq S_b'a + S_{1a}$$

S_g は非活性ガスに対して排気効果をもたないから S_g は

$$S_g = S_d' - (S_{bi} + S_{1i})$$

の関係で釣合っている。すなわち非活性ガスの分圧によって真空度が決まる。

ここでバルブを閉じると $S_d' = S_b'i = 0$

$$S_g = -S_{1i}$$

の関係で真空度は次第に落ちてゆく。

S_d' がゲッタ面をよごし、その効果を減殺するために排気速度が減少するものとすればバルブを開いた瞬間は $S_d'i$ は定常状態における $S_d'i$ に比べて小さいと考えられる。したがって極めて短い間、 S_g は

$$S_g = S_d' - S_{1i}$$

となって排気速度は定常状態より大きくなる。

そして再び $-S_{di}'$ の影響が時間と共に蓄積される結果

$$S_g = S_d' - (S_b'i + S_{1i}) \text{ に戻る。}$$

(d) 領域の排気曲線はこの過程はよって生じたのであろう。

通常の空気に対して定圧法で実測した排気速度を Fig. 9 に示す。リーク導入口と真空度測定管の位置は Fig. 1 に示す通りである。油拡散ポンプはバッフル付き、バルブは **Appropriately open** の状態である。このときの油拡散ポンプの排気速度は約 30l/s であった。

$5 \times 10^{-6} \sim 8 \times 10^{-5} \text{ mmHg}$ の間では排気速度は直線的に変化し $5 \times 10^{-5} \text{ mmHg}$ で 1000l/s, $1.2 \times 10^{-5} \text{ mmHg}$ で 3000l/s, $5 \times 10^{-6} \text{ mmHg}$ で 7000l/s の値が得られた。いずれも T_i の送り速度 24mg/min 一定である。

TiC 蒸発源

TiC 棒は前述の方法でセットし、接触部は TiC ベース (TiC 粉末 + 澱粉糊) を挟んで圧着する。ターミナルとヒータの間には Mo 板を数枚重ねて挟み、その間の

Fig. 9 Pumping speed of getter pump for normal air with oil diffusion pump when the valve was appropriately opened.

Fig. 10 TiC heater ($4.5 \times 4.5 \times 55\text{mm}$) after 200min. of evaporation at a feeding rate of wire 24mg/min.

温度勾配を小さくしておく。通電加熱 (平均 6 V, 550 A) をはじめて約 10~15 分間で蒸発温度に上げる。Ti 線を送るとヒータ面はぬらされるが Al の如く著しくはない。Fig. 10 に示したヒータは約 200 分、5 gr 蒸発後の蒸発源である。

ヒータの圧着部は送り込まれた Ti で新しく生じたと思われる堆積物が、また Ti が直接当たる部分は侵食の跡が認められる。用いた TiC 棒は遊離炭素量 0.01 % 以下、炭素含有量 $C_{1.0}$ の固溶体である。また焼結の際結合剤を用いていない。Ti が連続して送り込まれると次第に Ti 含有量に富む Sub carbide が生成し固相から液相に近づいてゆく。このために溶融点が下り変形し侵食の跡となるのであろう。ヒータは侵食によって切断するよりも繰返し、加熱によってうける熱衝撃のために折損することの方がより大きく寿命に影響を与えた。したがって昇温には注意する必要があったが、その後厚さ 2~3 mm、幅 10 mm のリボン状 TiC が得られるようになったので現在では $2 \times 10 \times 30\text{mm}$ のヒータを水冷ターミナルで両端から圧着する支持法にしている。圧着は外部から調節可能であり、圧着の調節と昇温に注意すれば上述の欠陥は著しく減る。またリボン状ヒータを用いるとヒータ面を小さくして余分の熱消費を減らすことができるのでポンプの温度上昇を抑えることにもなる。

ヒータは折損による寿命の制限が著しく少なくなったのでこの場合侵食と堆積によって制限を受ける。

Fig. 11 に約 5 時間使用後のヒータを示す。(送り速度 24mg/min) life time (寿命) は現在約 7 時間である。

Fig. 11 Ribbon type TiC heater ($2 \times 10 \times 30\text{mm}$) after evaporation of about 5 hours at a feeding rate of wire 24mg/min.

4. 結 び

TiC を蒸発源に用いたゲッタポンプを試作した。蒸発源の特性と、ゲッタポンプに油拡散ポンプを併用した場合の排気特性とについて以下のような所見が得られた。

- 1) TiC は Ti の蒸発源として有用である。
- 2) 油拡散ポンプを協力させることは極めて有効だが、このとき油の逆拡散がゲッタポンプの排気速度に著しい影響を与えるからトラップを設けてこの影響を取り除くことが重要である。またグリース、ゴムパッキング類の使用も排気速度に影響をおよぼす一因になることに注意しなければならない。

終りにポンプ試作に当り多大の援助を賜った富士真空研究所高月博士、および TiC を提供していただき御協力賜った住友電工伊丹製作所三好課長、原研究員の諸氏に深く感謝申しあげ、また本研究に終始御援助いただいた当所沢木技官(現松下電子工業研究所)また工作に種々協力を惜しまれなかった工作室の諸氏に厚く御礼申しあげます。

〔文 献〕

- 1) Tabata, Iwata, Sawaki. : *Vacuum*. 7/8 and 88 April (1959)
- 2) Milleron. N. : *Vac. Tech. Trans.*, p 148. (1957)
- 3) Holland. L : *Nature [London]* 182, 851, (1958)
- 4) Degras. D. A : *Le Vide* No. 81. Mai—Juin, 128, (1959)
- 5) 田畑、岩田、大工試季報 9, 3, (1958)
- 6) “ “ “ “ 10, 19, (1959)
- 7) Holland. L; *Le Vide* No. 81, Mai—Juin, 141, (1959)
- 8) ゲッタイオンポンプ(研究班) 真空 1, 1, (1958)