大気圧開放時の水分抑制によるベーキング不要の 高速超高真空排気と節電効果*

山崎 孝^{*1}・四家 淳一^{*1}・山形 基^{*1}
加藤 裕之^{*1}・北野 雅裕^{*1}・加藤 茂樹^{*2,*3}

Quick Pumping to Ultra High Vacuum without Baking and its Electric Power Saving Effect by Reduction of Water Vapor in Exposure Gas

Ko YAMAZAKI^{*1}, Junichi SHIKE^{*1}, Motoi YAMAGATA^{*1},
Hiroyuki KATO^{*1}, Masahiro KITANO^{*1} and Shigeki KATO^{*2,*3}

^{*1}Kitano Seiki Co., LTD, 7-17-3, Chuoh, Ohta-ku, Tokyo 143-0024 Japan

^{*2}High Energy Accelerator Research Organization, 1-1 Oho, Tsukuba-shi, Ibaraki 305-0801, Japan

^{*3}The Graduate University for Advanced Studies, 1-1 Oho, Tsukuba-shi, Ibaraki 305-0801, Japan

(Received March 13, 2013, Accepted December 11, 2013)

The development of a quick pumping scheme into medium vacuum or ultra high vacuum (UHV) reduces not only the cost and the duration of pumping down, but it also reduce CO₂ emission that is known as one of serious cause of global warming. In this study, we aim for quick pumping into UHV without baking but with both introduction of well dried nitrogen gas into a chamber and improvement in the operation of the vacuum system. Baking and purging of a nitrogen gas line made of stainless steel have been applied in order to exclude water vapor, resulting in a dew point of -92°C (0.065 vol. ppm) in the gas line. For practical reason we carried out nitrogen gas showering onto an open flange of the chamber, which reduced the pumping duration to achieve a pressure of 1×10^{-6} Pa to 3 hours, while it took 9 hours without showering. It turned out that the quick pumping of a UHV system with no baking operation was successfully achieved and could reduce the electric power consumption.

1. はじめに

中高真空への高速排気やベーキングを実施せずに超高真空へ高速排気する技術の確立は、実験設備や生産ラインにおける排気時間の短縮、人的コスト削減および節電によるコストの削減、更には地球温暖化の原因となる二酸化炭素排出の削減にも繋がる。それに加え、ベーキング不要であることは、ベーキングの準備や温度管理などの手間の排除、ベーキングにより生じる待機時間の排除、ベーキングヒーター、断熱材、コントローラー等のハードウェアの排除、ベーキングにより生じる問題点の排除（配線の損傷および腐食、チェンバーの加熱・冷却の繰り返しにより生じるリーク等）にも繋がる。超高真空への高速排気を達成するためには、圧力 P (Pa)、ガス放出速度 Q (Pam³/s)、実効排気速度 Se (m³/s) の関係式 $P=Q/Se$ より、 Q を小さくするか、 Se を大きくすれば良いことが分かる。 Se を大きくするためには、当然のことながら、真空ポンプとチェンバーを結ぶ配管のコンダクタンス C (m³/s)、あるいはポンプ本体の排気速度 S_0 (m³/s) を大きくする必要がある。しかしながら、その C を大きくするには装置固有の諸条件のため、実用上限界があり、 S_0 を大きくするためにはコストが大きく掛かってくることとなる。従って、低コストで且つ効率よく圧力を下げるには、ガス放出速度を小さくすることが最も本質的であ

り、現実的である。ガス放出速度を下げるには様々な方法があり、装置製造時の工夫や処理によるものと、装置完成後の大気開放時の工夫、または付帯装置によるものの2つに大別できる。前者の方法で高速排気を目指した研究については、これまでに多く報告されている¹⁻⁴⁾。

オイルフリーの真空系が一般的になっている中で、中高真空や超高真空への高速排気を妨げるのは、付着確率が高く、脱離の活性化エネルギーの中途半端な水分である。チェンバー表面への水分吸着は、装置の大気開放時に起こるため、先に述べた2つの方法のうち、後者の装置大気開放時の工夫、または付帯装置により、表面への水分吸着を抑制することで、ガス放出速度を下げる事が可能となるであろう。水分は、その水素結合のため凝集しやすい性質を有し、チェンバーを大気開放した際に、膨大な量の水分子が表面を覆う。体積排気後から高真空までの真空排気は、ベーキングしなければ、表面における水分の吸着・脱離に律速されていると言える。よって、チェンバー表面への水分吸着を抑制することは、超高真空への高速排気に非常に有効であろう。表面への水分子の吸着に関する研究や真空排気と導入ガス中の水分に関する研究はこれまでも報告されている⁵⁻⁸⁾。しかしながら、導入ガス中の水分含有量とガス放出速度に関する定量的な研究は現在において無く、真空における水の問題は古くて新しい問題であると言える。

我々はこれまでに、窒素ガスで大気圧にする際の窒素ガス中の水分含有量に焦点を当て、1) 導入ガス中の水分含有量とガス放出速度の相関性をオリフィス法により定量的に測定、2) 導入窒素ガス中の水分含有量の変化に伴う残留ガススペクトルの変化の観察、3) チェンバーへの表面処理とAFM

* 平成24年7月13日 日本真空学会2012年7月研究例会で発表

^{*1} 北野精機株式会社 (〒143-0024 東京都大田区中央 7-17-3)

^{*2} 高エネルギー加速器研究機構 (〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1)

^{*3} 総合研究大学院大学 (〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1)

による表面観察を行ってきた⁹⁾。

今回我々は、超高真空材料に標準的に用いられている表面処理を施した真空容器を試料として、装置大気開放時の工夫により超高真空までの高速排気を目指していくつかの実験を行った。

2. 実験装置および実験方法

2.1 実験装置

実験装置の構成を Fig. 1 に示す。SUS304製のメインチェンバーはオリフィス設置箇所を境に上流チェンバー（内径：φ 147 mm，内容積：4.4 L，内表面積：0.2 m²）と下流チェンバー（内径：φ 147 mm，内容積：7.0 L，内表面積：0.28 m²）に分かれていて、それぞれバフ研磨（#400）と電解研磨が施されている。排気システムには、2 台のターボ分子ポンプ（TMP1：Edwards，STP-310，300 L/s TMP2：Balzers，TPU062，62 L/s）とスクロールポンプ（DSP1：ANEST IWATA，ISP-250C，250 L/min）を使用した。圧力測定にはピラニ真空計と B-A 真空計の複合真空計（LEYBOLD VACUUM，ITR 90）およびエクストラクタ真空計（LEYBOLD VACUUM，IE 514）を使用し、残留ガス分析には四重極型質量分析計（INFICON，TRANSPECTOR，C100M）を使用した。なお、以下記載する圧力は全て窒素換算値である。Fig. 1 の一点鎖線で囲った範囲に対して、実験前に200℃でベーキングを実施した。

2.2 窒素ガス導入系

窒素ガス導入系には、窒素ガス中の水分含有量を監視制御するために、静電容量式の露点計（XENTAUR，LPDT）を設置した。窒素ガス導入系の配管材質やベーキングの有無が窒素ガス中の水分含有量に及ぼす影響に関しては、既に報告している（Table 1）⁹⁾。今回の研究においても、可能な限り窒素ガス中の水分含有量を抑制するために、配管は全て SUS304製の BA（Bright Annealing）管で構成されている。Fig. 1 の破線で囲った範囲に対して、リボンヒーターを使用し約150℃でベーキングを実施した。ベーキング後に、DSP2 で排気しながら窒素パージを行うことで、水分含有量の更なる低減を試みた。ガス導入系に供給する窒素ガスとして、2 種類を選んで比較した。高純度窒素ガス（G1 純度：6N）は、複数メーカーで定められた露点基準が0.53 vol. ppm（-80℃）以下¹⁰⁾であり、CO，CO₂，NO_x，SO₂ 等の不純

物も一般窒素ガスと比較して 1/100 と少なく、また、これらの純度が保証されている。一方、一般窒素ガス（純度：4N）は露点が11 vol. ppm（-60℃）以下で、水分を含めた不純物は、ポンペにより個体差が存在する可能性がある。今回使用した一般窒素ガスの露点を測定したところ、水分含有量は露点計の検出限界付近（0.01 vol. ppm）であり、両方のガスを窒素導入系に供給して、比較したが、得られた水分含有量の値はほぼ同一であった。そのため、コストが高純度窒素ガスに比べて約 1/8 である一般窒素ガスを使用した。窒素ガス導入系における、ベーキング実施後の導入ガス中の水分含有量は、ベーキング範囲に依存するが、10 vol. ppm 程度であった。その後、DSP2 で排気しながら窒素パージを行うと、2 vol. ppm～0.065 vol. ppm まで値を下げる事が可能であった。今回使用した窒素ガスはもともと水分含有量が 0.01 vol. ppm 付近であったが、導入ガス系の配管・継手・バルブに吸着している水分が脱離し、混入することにより水分含有量が上昇したと考えられる。導入窒素ガス中の水分含有量を抑制するためには、導入ガス系の配管・継手・バルブに吸着した水分を除去し、配管の清浄状態を維持することが重要であろう。

2.3 実験

実験 I：オリフィスを用いたガス放出速度の定量測定

文献 9) に既に述べてあるので、ここでは簡単に説明する。超高真空（1×10⁻⁶ Pa 以下）に達している装置に、ポンプ停止後、水分含有量の異なる 5 種類の窒素ガスを一気圧導入し、1 時間待機後にあらためてポンプを始動、その

Table 1 The water concentration in nitrogen gases and air⁹⁾.

Condition		Water Vapor Concentration (vol. ppm)
A	Air Through Polyurethane Tube	12000
B	N ₂ Gas Through Polyurethane Tube	160
C	N ₂ Gas Through Stainless Steel Tube with Baking	12
D	N ₂ Gas Through Stainless Steel Tube with Baking and Purging of N ₂ Gas Line	2.6
E	N ₂ Gas Through Stainless Steel Tube with Baking and Repeated Purging of N ₂ Gas Line	0.065

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental system.

Fig. 2 N₂ gas shower pipe.

後、オリフィス法により上流チェンバーに対してガス放出速度を測定した。

オリフィスは厚さ 2 mm の無酸素銅円盤に $\phi 7.5$ mm の穴を開け 120° の角度でテーパ加工したものを使用した。窒素ガスコンダクタンスは 24°C において $5.2 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{s}$ であった。

実験Ⅱ：フランジを開放して大気にさらした後の圧力降下曲線の測定

真空装置を大気に開放して内部の作業を行う際、水分を多く含んだ生の大気になるべく触れさせないような工夫が、その後の再排気の圧力降下時間にどの程度の効果があるかを調べた。ここではオリフィスを取り外し、ガス放出速度は測定していない。水分含有量 0.065 vol. ppm の窒素ガスを導入してチェンバー内を一気圧にした後、a)～c)では10分間の作業を想定してフランジを開放し、その後フランジを閉じて50分間待ち大気圧への曝露時間をオリフィス設置時と同様の1時間とした後、排気を開始した。フランジ開放時の操作は下記の通りである。

- フランジ開放時に特別な工夫をせず室内の大気に触れさせた。
- フランジ開放中も窒素ガス導入系より、流量 1 L/s でチェンバーに窒素ガスを流し続けた。
- SUS304製 BA 管に孔を多数開けた窒素シャワー配管を、Fig. 2 に示すように開放するフランジの上部に設置し、フランジ開放中、開口部に流量 1 L/s で乾燥窒素のカーテンを作った。
- 比較のために窒素ガス導入後、フランジを開けずに60分間放置した。

3. 結果および考察

3.1 導入窒素ガス中の水分含有量とガス放出速度

導入ガス中の水分含有量が低下するに従い、真空排気後のガス放出速度が顕著に低下することが、これまでの研究で明らかになっている⁹⁾。Table 1 に示した条件 A から条件 E におけるガス放出速度の時間変化を Fig. 3 に示す⁹⁾。図の横軸はポンプを起動してからの経過時間であり、縦軸はガス放

Fig. 3 Total outgassing rate as a function of pumping time from 40 s to 10^5 s for five types of nitrogen gas with different water vapor concentrations which were introduced into the vacuum chamber before evacuation⁹⁾. Slight undulation in measured curves at low outgassing rate is due to change in ambient temperature.

出速度である。条件 E (0.065 vol. ppm) のとき、排気開始後24時間で $2.6 \times 10^{-9} \text{ Pam}^3/\text{sm}^2$ の非常に小さい値が得られた。排気開始から24時間後に RGA で測定した残留ガス分析結果を比較すると、条件 A (12000 vol. ppm) では水が主な残留ガス種であるのに対し、条件 E の場合は水素が主な残留ガス種であった。さらに大気を導入してからベーキングを5日間実施したときの残留ガス分析結果も掲載した。ベーキングを実施していない条件 E のスペクトルがベーキングを実施した時のスペクトルとほぼ同様であることが確認出来た (Fig. 4)。水の脱離の活性化エネルギーを 0.6 eV とすると、表面での平均滞在時間は、室温において 10^{-3} 秒程度となる。その為、表面に留まり続けることなく脱離するが、すぐに別の表面に吸着し、なかなか排気されない。一般的に真空排気に要する時間は数時間から1日であるために、この中途半端な滞在時間が水の排気にとって問題となる⁴⁾。そのため、加熱排気無しに水を排除することは困難であるが、条件 E では、排気中にベーキングを実施したチェンバーと同等の真空の質が得られた。ベーキング実施のための手間を考慮すると、窒素ガス中の水分含有量の低減がいかに効果的であるかが分かる。Fig. 3 の両対数グラフの傾きはほぼ $1/t$ で減少するガス放出速度の変化であり、フロインドリッヒ型あるいはテムキン型の吸着等温式で表した変化に対応する。ただし、水分含有量が多い条件 A のような場合、Fig. 4(a) でも分かるようにガス放出の主成分が吸着した水蒸気であるため、 $1/t$ の傾向は排気開始から24時間付近まで続く。水分含有量が少ない条件 E の場合には、ガス放出の主成分は Fig. 4(b) で示したように表面近傍での拡散が関与した水素ガスになるため、グラフの傾きが緩やかとなる。実測したガス放出速度より計算で求めた圧力と実際の排気で得られた圧力を比較する為に、オリフィスを取り外した状態で、条件 E の窒素ガ

Fig. 4 (a) RGA spectrum at 24 h after the evacuation start of the chamber exposed with air A in Table 1, (b) RGA spectrum at 24 h after the evacuation start of the chamber exposed with nitrogen gas E and (c) RGA spectrum at 44 h after 120 h baking of the chamber exposed with the air A.

Fig. 5 Relationship of water concentration and outgassing rate at 24 h after the start of evacuation. Error bars show measurement errors of dewpoint transducer.

スを導入し、圧力を測定した。条件 E で得られた、24 時間後のガス放出速度より計算で求められる圧力は、 4.2×10^{-9} Pa であった。それに対し、オリフィスを取り外した状態での 24 時間後の到達圧力は 9.5×10^{-9} Pa (**Fig. 6, d**) であり、ガス放出速度から計算で求めた圧力が、実際の排気実験で測定した圧力とかなり近い値になることが分かった。

導入窒素ガス中の水分含有量と排気を開始してから 24 時間後のガス放出速度の関係を示した対数グラフを **Fig. 5** に示す。挿入図は両線形グラフである。この **■** で示した計測結果を見ると、後者のグラフで測定値を結ぶ線が原点を通らない理由は、水分含有量が少ないときは **Fig. 4(b)** で分かるように残留ガス成分の多くが水素であるためである。Fig. 5 に

示しているのは全ガス放出速度なので、0.065 vol. ppm のデータについては、**Fig. 4(b)** の RGA スペクトルの水素分子と水分子のイオン強度比およびこれらに対する RGA の相対感度係数を使って、水素の放出速度を差し引いて水の放出速度だけを計算により求めた。補正した結果を **Fig. 5** の **▲** に示した。その結果、両線形グラフにおいてはほぼ原点を通る曲線となる。この補正後の曲線より、水分含有量の増加に伴いガス放出速度はゆるやかに 1/2 乗に近い形で増加していく事が分かる。**Fig. 3** の考察で、水分子のガス放出速度の変化はフロインドリッヒ型あるいはテムキン型の吸着等温線で支配されていると述べたが、**Fig. 5** の結果より、水分含有量の増加に伴って水分子の曝露量が高くなるのと、ガス放出速度

の増加は飽和する傾向にあることが分かる。これは曝露量の増加に伴って吸着エネルギーが下がり、吸着量が飽和する傾向をもつフロインドリッヒ型あるいはテムキン型の吸着を表し、結果、ガス放出速度の増加も飽和する傾向になったと考えられるが、今後のさらなる実験と解析が必要となろう。

3.2 水分含有量の制御と節電効果

Fig. 3 より、条件 E の窒素ガス (0.065 vol. ppm) 導入時と条件 A の大気 (12000 vol. ppm) 導入時を比較すると、ガス放出速度が $1.0 \times 10^{-7} \text{ Pam}^3/\text{sm}^2$ まで達するには、条件 E では約 9 分間の排気が必要であり、ターボ分子ポンプとドライポンプの消費電力の合計は 244 W なので、この間の消費電力量は 0.037 kWh となる。それに対し条件 A では約 15 時間の排気が必要であり、その時の電力量は約 3.7 kWh である。2 つの条件を比較すると電力量は約 100 倍異なる。排気の初期には一時的に消費電力が、244 W から 320 W へ約 5 秒間上がるものの、その後の消費電力量 0.037 kWh の約 0.3% に過ぎず、無視できる値であった。そのため、排気時間と消費電力量は、ほぼ比例関係であった。

さらに、ベーキングの有無による消費電力量の差を考える。仮に、通常の大気を導入後、真空排気途中に 1.5 kW の平均電力で 24 時間のベーキングを挟み、48 時間で超高真空に到達しようとする、ベーキングと真空ポンプの消費電力量を合わせて、約 48 kWh というような大きな電力量になる。それに比べ、窒素ガスを導入し、ベーキングを行わずに 24 時間の排気を行った場合の電力量は約 6 kWh であり、その差は 1/8 である。さらに真空排気に必要な時間も半分で済む。以上で分かるように、ベーキングを不要とすることで、節電に大きく貢献できる。

Fig. 6 Pumping curves with different operation conditions for gas exposure of the chamber. Slight undulation in measured curves at low pressure is due to change in ambient temperature.

3.3 大気開放後の高速排気

大気開放後の高速排気を確認するために、2.3の実験Ⅱで述べた実験手順を実施した。条件 a から d における圧力の時間変化を Fig. 6 に示す。条件 a (大気開放のみ) と比較し、条件 b (1 L/s で窒素フロー + 大気開放) は、排気初期では排気時間の短縮が見られるものの、24 時間後では、ほぼ同じ圧力となった。ただし、初期排気で効果が見られることから、若干の大気の流入を防ぐことはできたと考えている。一方、条件 c (1 L/s で窒素シャワー + 大気開放) では、排気開始後 1 時間の時点において、条件 a と大凡 1 桁の圧力差があり、窒素シャワーの効果が出ていることが分かる。 $1.0 \times 10^{-6} \text{ Pa}$ までの到達時間は条件 a では約 9 時間掛かっていたのに対し、条件 b では約 7 時間、条件 c では約 3 時間であった。窒素シャワーに関しては、作業のためにチェンバー内に手を入れた時の効果の検証が必要になるが、試料準備室のない真空装置で採用した場合、一定の効果が期待できる。

4. 結 論

導入窒素ガス中の水分含有量はガス放出速度に大きく影響を与えることがこれまでの我々の研究で明らかになっていたが、今回はさらに装置運用の工夫により、無ベークによる超高真空までの高速排気を目指し、その節電効果についても調べた。導入窒素ガス中の水分含有量を抑制するためには、窒素ガス導入系に対してベーキングおよび窒素パージを実施して配管・継手・バルブに吸着した水分の除去を行い、且つ、その導入系内表面の清浄度を維持することが重要であると判明した。しかも、この作業はドライポンプのみの排気で十分であることが明らかになり、このことはコスト削減にも繋がることとなる。

すでに報告した研究⁹⁾の中では、導入窒素ガス中の水分含有量を 0.065 vol. ppm まで減らすことで $1.0 \times 10^{-7} \text{ Pam}^3/\text{sm}^2$ までの到達時間と電力量を、大気導入時と比較して、1/100 に削減できることを明らかにしているが、本研究においてはさらに実用性を考慮して開放フランジ直上からの窒素シャワーを試みた。その結果、排気開始から $1 \times 10^{-6} \text{ Pa}$ に到達するまでの排気時間を、大気開放のみ行った際の約 9 時間に対して、約 3 時間まで大幅に短縮できることを明らかにした。今回使用したような規模の装置において、通常大気導入後に 24 時間のベーキングを要する場合と窒素ガス導入によりベーキングが不要になる場合を比較すると同じ圧力に達するまでの電力は 8 倍異なることが分かった。チェンバーベーキングが不要になることで節電に貢献できることはもちろん、ベーキングの準備や温度管理と言った手間、ヒーターやコントローラー等のハードウェアの準備コスト、そして、配線の腐食や加熱・冷却の繰り返しにより生じるリークなど多くの問題点を排除することができることもその利点である。

〔文 献〕

- 1) S. Kato: J. Spectroscopic. Soc. Japan, **44** (1995) 81.
- 2) S. Kato, M. Aono K. Sato and Y. Baba: J. Vac. Sci. Technol. A, **8** (1990) 2860.
- 3) S. Kato: J. Japan Inst. Metals, **32** (1993) 727.
- 4) M. Miki: Doctoral thesis of the graduate university for ad-

- vanced studies (1994).
- 5) K. Takahashi and M Edamura: Shinku, **36** (1993) 152.
  - 6) Y. Kurokawa, K. Takeuchi and Y. Tuji: Shinku, **37** (1994) 228.
  - 7) Y. Ishikawa: Shinku, **40** (1997) 145.
  - 8) Y. Tuji, T. Tanaka, K. Takeuchi and Y. Saito: Shinku, **40** (1997) 377.
  - 9) K. Yamazaki, J. Shike, M. Yamagata, M. Kitano, M. Nishiwaki and S. Kato: Vacuum, **84** (2010) 756.
  - 10) TAIYO NIPPON SANSO Corp., Specialty Gases Web Catalog-pure gases, <http://www.tn-specialtygases.jp/catalog/pure/index.html> (Last accessed: 2013-12-28)