

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 5 日現在

機関番号：82118

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26390070

研究課題名(和文)三次元網目状ジルコニウム多孔体を用いた非蒸発ゲッターポンプの開発

研究課題名(英文) Development of a non-evaporable getter pump using a three-dimensional mesh zirconium porous body

研究代表者

菊地 貴司 (kikuchi, takashi)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・技師

研究者番号：30592927

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：St707合金ピル60個をヒーター周りに放射状に配列したピル積層型NEGポンプを開発し、排気速度を測定した結果、H<sub>2</sub>、N<sub>2</sub>、CO、CO<sub>2</sub>に対して130-110、35-15、170-1120、200-80 L/sという値を得た。この性能は市販のNEGポンプと比較しても遜色ない。さらに、ステンレス表面に清浄なチタン(Ti)を真空蒸着し、さらに清浄なパラジウム(Pd)を真空蒸着すると、最高温度185℃、6時間の活性化により、Pd/Ti薄膜が真空排気作用を示すこと、大気導入と活性化を繰り返しても真空排気機能が保たれることを見出した。本Pd/Ti薄膜は新しいNEGポンプとして幅広い応用が期待される。

研究成果の概要(英文)：Non-evaporable getter (NEG) pumps are widely used in ultrahigh vacuum because they have a high pumping speed for active residual gases. We constructed a new NEG pump which uses commercial 60 NEG pills (St707, 70 wt% Zr, 24.6 wt% V, and 5.4 wt% Fe). The NEG pills are vertically and radially aligned around a heater to maximize the effective area for pumping. After activation at 400 °C for 30 min, the pumping speeds of the NEG pump were measured with the orifice method. Pumping speeds of 140-130, 200-140, 190-130, and 35-17 L/s were estimated for H<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub>, and N<sub>2</sub> gasses, respectively. The performance is comparable with commercial NEG pumps. Next we developed a new NEG coating method using titanium (Ti) vacuum sublimation followed by palladium (Pd) vacuum sublimation. The Pd/Ti thinfilm work as a NEG pump after 6-hours baking with a maximum temperature of 185 °C. Since the Pd/Ti thinfilm is durable against repeated vent-activation cycles, it can be used for various vacuum systems.

研究分野：薄膜・表面界面物性

キーワード：真空 真空排気 非蒸発ゲッターポンプ 排気速度測定

#### 1. 研究開始当初の背景

東日本大震災により原子力発電所が停止して以来、国内の製造工場の省エネルギーに貢献する科学技術の開発は最優先課題の一つである。真空ポンプは半導体、液晶ディスプレイ、有機 EL 素子、太陽電池、機能性薄膜等の製造装置に広く使われており、かつエネルギー消費量が大きいため、省エネルギー真空ポンプの開発が産業界に与える波及効果は極めて大きい。そこで我々はエネルギー消費量が極めて少ない非蒸発ゲッター (non-evaporable getter, NEG) ポンプに着目した。真空中で NEG 材料を加熱して、NEG 表面を清浄化し、残留ガスを吸着して排気する真空ポンプを NEG ポンプと呼ぶ。NEG 材料としては Ti、V、Zr、Nb、Hf、Ta、Zr-V-Fe 合金 (St707<sup>®</sup>合金)、Ti-Zr-V 合金などが知られている。NEG ポンプは、エネルギー消費が極めて少ない、 $10^{-10}$ Pa 台まで排気できる、振動・騒音を生じない、小型軽量である、油をまったく使用しないといった利点を持つ。しかしながら、従来の NEG 材料には、活性化 - 排気 - 大気圧ベントを繰り返すと排気速度が低下する、粉塵によりバルブやロータリーポンプを損傷する、日本国内にメーカーがない、などの問題点があった。

#### 2. 研究の目的

本研究の当初の目的は、三次元網目構造を持つ高純度ジルコニウム多孔体を用いた新しい NEG ポンプの開発であった。しかし、高純度ジルコニウム薄板を用いて試作した NEG ポンプが排気作用を示さなかったこと、酸化を防いで三次元網目構造を持つジルコニウム多孔体の製造することは極めて難しいことがわかったことから、

- 1) St707<sup>®</sup>合金を製膜した三次元網目構造を持つニッケル多孔体を用いた NEG ポンプの開発、
  - 2) 市販の St707<sup>®</sup>合金ピルを用いた排気速度の大きい新しい NEG ポンプの開発、
  - 3) 活性化 - 排気 - 大気圧ベントを繰り返しても排気速度が低下せず、粉塵も発生しない新しい NEG 材料の開発、
- の3つを新しい目標として研究を進めた。

#### 3. 研究の方法

- 1) St707<sup>®</sup>合金を製膜した三次元網目構造を持つニッケル多孔体を用いた NEG ポンプの開発

三次元網目構造を持つニッケル多孔体に St707<sup>®</sup>合金をスパッターにより製膜して NEG 材料を製作した。この NEG 材料を用いて製作した NEG ポンプの排気速度をオリフィス法により測定したところ、水素ガスに対して 3L/s 以下の排気速度しか得られなかった。

- 2) 市販の St707<sup>®</sup>合金ピルを用いた排気速度の大きい新しい NEG ポンプの開発  
市販の St707<sup>®</sup>合金ピル 60 個をヒーター

周りに放射状に配列してピル積層型 NEG ポンプを製作した。さらにその排気速度を、オリフィス法を用いて測定した。

- 3) 活性化 - 排気 - 大気圧ベントを繰り返しても排気速度が低下せず、粉塵も発生しない新しい NEG 材料の開発

ステンレス 304 製の真空容器の内面に清浄なチタン (Ti) を 1  $\mu$ m 真空蒸着し、さらに清浄なパラジウム (Pd) を 10 nm 真空蒸着した。この真空容器を最高温度 185  $^{\circ}$ C、6 時間でベークしたのち、真空バルブを閉じてターボ分子ポンプを切り離れたあとの排気曲線を測定して、Pd/Ti 薄膜が真空排気作用 (NEG 作用) を示すかどうか調べた。さらに、大気ベント、真空排気、活性化を 6 回繰り返して、真空排気作用が維持されるかどうかを調べた。

#### 4. 研究成果

- 1) St707<sup>®</sup>合金ピル 60 個をヒーター周りに放射状に配列したピル積層型 NEG ポンプの排気速度を測定した結果、H<sub>2</sub>、N<sub>2</sub>、CO、CO<sub>2</sub> に対して 130-110、35-15、170-1120、200-80 L/s という値を得た。この性能は市販の NEG ポンプと比較しても遜色ない。そこで特許を出願し、民間企業と特許実施契約を締結して、本 NEG ポンプの市販を開始した。平成 28 年度の売上げは 240 万円以上であった。

- 2) ステンレス表面に清浄なチタン (Ti) を真空蒸着し、さらに清浄なパラジウム (Pd) を真空蒸着すると、最高温度 185  $^{\circ}$ C、6 時間の活性化により、Pd/Ti 薄膜が真空排気作用を示すこと、大気導入と活性化を 6 回繰り返しても真空排気機能が保たれることを見出した。

従来の NEG コーティングはスパッター製膜された TiZrV 薄膜が主流である [C. Benvenuti et al., Vacuum **60**, 57 (2001)].。しかし、従来の NEG コーティングには、

- 1) 活性化と大気導入を繰り返すと TiZrV が酸化されて排気速度が急速に低下する、
- 2) 活性化の律速反応が酸素の拡散であるため活性化条件が 180  $^{\circ}$ C、24 時間加熱と加熱温度が比較的高く、加熱時間も比較的長い、
- 3) 希ガス導入、磁場下でのプラズマ生成、高電圧印加が必要であるためコーティング装置が大掛かりとなり、コーティング装置製造コストもコーティングコストも高い、
- 4) コーティング条件の設定に熟練を有するため専門技術者が必要、

といった問題がある。このため従来の NEG コーティングは加速器分野でしか利用されていない。

我々が開発した真空蒸着により Pd/Ti 薄膜を製膜するという新しい NEG コーティング法は、

- 1) NEG 表面が耐酸化性の高い Pd で覆われているため、大気圧導入と真空排気、活性化を繰り返しても NEG が酸化しないので、真空排気機能を維持できる、
- 2) 活性化の律速反応が酸素の拡散ではなく、水素の拡散・脱離であるため、活性化温度を原理的に 100~150 まで下げることができる、
- 3) 真空蒸着で製膜するため NEG コーティング装置製作コストと NEG ポンプ製造コストが低い、
- 4) 超高真空中で Ti フィラメントと Pd フィラメントを通電加熱するだけで NEG コーティングできるので、学部学生レベルの非熟練技術者でも NEG コーティングを実施できる、  
といった優位性を持つ。このため、加速器だけでなく、電子顕微鏡や半導体等製造装置にも利用できると期待される。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 2 件)

Hiraku Kodama, Shinya Ohno, Masatoshi Tanaka, Masato Tanaka, Koji K. Okudaira, Kazuhiko Mase, and Takashi Kikuchi, Low-cost, high-performance nonevaporable getter pumps using nonevaporable getter pills, *J. Vac. Sci. Technol. A* **34**, 051601 (2016).

DOI:<http://dx.doi.org/10.1116/1.4961050>

K. Mase, M. Tanaka, N. Ida, H. Kodama, and T. Kikuchi, Development of Low-Cost, High-Performance Non-Evaporable Getter (NEG) Pumps, *AIP Conf. Proc.* **1741**, 030015 (2016).

DOI :10.1063/1.4952838

[学会発表](計 12 件)

田中正人、伊田直也、小玉開、菊地貴司、間瀬一彦、「加速器、ビームライン、エンドステーションのための低コスト高性能非蒸発ゲッター (NEG) ポンプの開発と排気速度測定」、第 28 回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム、立命館大学びわこ・くさつキャンパス、滋賀県草津市、2015 年 1 月 12 日。

菊地貴司、「ビームライン、エンドステーションのための低コスト高性能非蒸発ゲッター (NEG) ポンプの開発と排気速度測定」、第 3 回物構研サイエンスフェスタ、つくば国際会議場、茨城県つくば市、2015 年 3 月 17 日。

菊地貴司、間瀬一彦、田中正人、小玉開、「NEG ピルを用いた低コスト高性能 NEG ポンプの開発」、2015 年真空・表面科学合同講演会、茨城県つくば市、2015

年 12 月 3 日。

菊地貴司、田中正人、小玉開、間瀬一彦、「高性能ピル積層型 NEG ポンプの開発と排気速度測定」、第 29 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、千葉県柏市、2016 年 1 月 10 日

菊地貴司、田中正人、小玉開、間瀬一彦、「St707<sup>®</sup>NEG ピル積層型 NEG ポンプの開発と排気速度測定」、2015 年度量子ビームサイエンスフェスタ、つくば国際会議場、茨城県つくば市、2016 年 3 月 15 日。

三嶋東、早坂直之、大家溪、中野武雄、菊地貴司、間瀬一彦、「非蒸発ゲッターポンプ用合金膜のスパッタ製膜」、表面技術協会第 133 回講演大会、東京都新宿区、2016 年 3 月 22 日。

三嶋東、桑島理樹、中野武雄、大家溪、間瀬一彦、菊地貴司、非蒸発ゲッターポンプ用合金膜のスパッタ製膜、2016 年真空・表面科学合同講演会、名古屋国際会議場(愛知県・名古屋市)、2016 年 11 月 29 日

宮澤徹也、間瀬一彦、飛嶋健佑、菊地貴司、新しい非蒸発ゲッター (NEG) コーティングの開発、2016 年真空・表面科学合同講演会、名古屋国際会議場(愛知県・名古屋市)、2016 年 11 月 29 日

H. Kodama, S. Ohno, M. Tanaka, M. Tanaka, K. K. Okudaira, K. Mase, T. Kikuchi, Development of Low-Cost, High-Performance Non-Evaporable Getter (NEG) Pumps for Synchrotron Light Facilities, 80th IUVESTA Workshop on the Ultra Low Emittance Light Source Vacuum Systems, NSRRC, Hsinchu, Taiwan, Oct. 27, 2016.

K. Mase, T. Kikuchi, H. Kodama, S. Ohno, M. Tanaka, K. K. Okudaira, M. Tanaka, Low-Cost, High-Performance Non-Evaporable Getter (NEG) Pumps Using NEG Pills, the 9th edition of the Mechanical Engineering Design of Synchrotron Radiation Equipment and Instrumentation (MEDSI) conference, Cosmocaixa, Barcelona, Spain, Sep. 14, 2016.

Azuma Mishima, Naoyuki Hayasaka, Kei Oya, Takeo Nakano, Kazuhiko Mase, Takashi Kikuchi, 20th International Vacuum Congress (IVC-20); Busan Exhibition & Convention Center (BEXCO), Busan, Korea, Aug. 24, 2016.

宮澤徹也、間瀬一彦、飛嶋健佑、栗原真志、菊地貴司、「新しい非蒸発ゲッター (NEG) コーティングの開発」、2016 年度量子ビームサイエンスフェスタ、つくば国際会議場、茨城県つくば市、2017 年 3 月 14 日。

[図書](計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況（計 3 件）

名称：非蒸発型ゲッタコーティング部  
品、容器、製法、装置

発明者：間瀬一彦、菊地貴司

権利者：高エネルギー加速器研究機構

種類：特許

番号：特願 2016-230510

出願年月日：平成 28 年 11 月 28 日

国内外の別：国内

名称：非蒸発型ゲッタポンプ

発明者：間瀬一彦、菊地貴司

権利者：高エネルギー加速器研究機構

種類：特許

番号：特願 2015-233674

出願年月日：平成 27 年 11 月 30 日

国内外の別：国内

名称：非蒸発型ゲッタ材、非蒸発型ゲ  
ッタモジュール、及び非蒸発型ゲッタ  
ポンプ

発明者：間瀬一彦、菊地貴司

権利者：高エネルギー加速器研究機構

種類：特許

番号：特願 2014-210649

出願年月日：平成 26 年 10 月 15 日

国内外の別：国内

取得状況（計 0 件）

〔その他〕

ホームページ等 なし

6. 研究組織

(1)研究代表者

菊地 貴司（KIKUCHI Takashi）

高エネルギー加速器研究機構・物質構造科  
学研究所・技師

研究者番号：30592927

(2)研究分担者

（ ）

研究者番号：

(3)連携研究者

（ ）

研究者番号：

(4)研究協力者

（ ）