

## 超高温真空用低温マニピュレーター

Low-Temperature-Manipulator for Ultra High Vacuum

荒川 一郎\*・桜井 誠\*\*・辻 泰\*  
Ichiro ARAKAWA, Makoto SAKURAI and Yutaka TUZI

## 1. はじめに

真空工学および表面物理学の分野では、100 K 以下の低温表面におけるさまざまな現象を対象とする研究が盛んになってきている。たとえば、固体表面での物理吸着現象の基礎過程、凝縮層の成長機構と構造、吸着層や凝縮層と各種の入射粒子（電子、イオン、中性粒子、光子）との相互作用、希ガス吸着層を対象とする二次元相の物性などである。これらの研究に関連した実験を行うためには、超高温真空中で低温の清浄表面を扱う技術が要求されるために、実験装置を設計・製作する段階で、使用する材料、工作方法等に新しい工夫が必要となる<sup>1)</sup>。ここでは、上記のような研究を進めるための第一段階として試作した、試料を約 40 K まで冷却できる簡単な試料操作機構（低温マニピュレーター）の構造・性能について報告する。

## 2. 設 計

表面を扱う研究では、試料表面の清浄化とその維持のために、実験は超高温真空雰囲気中で行わねばならない。したがって、装置には一般に下記の性能が要求される。

(1) 超高温真空 ( $\leq 10^{-7}$  Pa) を得るためには、装置全体を 200~400°C に加熱する脱ガス処理が必要であり、これに耐える材料と工作方法を用いなければならない。

(2) 試料の清浄表面を得るためには、通電加熱やレーザーを用いた高温処理（試料の種類により 1000~2000°C に達する）、イオン衝撃清浄化処理等が必要であるため、試料ホルダーはそれに対応できなければならない。

(3) 表面における種々の現象の研究を行うためには、その研究目的に使用する実験装置のほかにも、表面の清浄度や結晶構造の観察を行うための複数の装置（低エネルギー電子線回折装置、Auger 電子分光装置等）が使用されることが多い。これらは *in situ* に測定できることが望ましく、そのためには真空中での試料の移動、回転、位置の微調整等の機能が必要となる。

以上の条件のもとに試料を冷却する機構を導入しなければならない。70 K 以下の温度を得ようとする場合に便

利な方法は、液体ヘリウムから蒸発してくる冷たいヘリウム・ガスを使って試料を冷却する方法である。<sup>2)</sup> この方法は、液体ヘリウムを装置内に溜め込む方法（タンク式、バッチ式クライオスタット）に比べて、低温になる部分の寸法が小さいため試料を動かすのが容易であり、また得られる温度範囲が広いなどの長所を持っている。<sup>1)</sup> 短所は低い温度（20 K 以下）を得る事と試料温度の制御が難しいという点であるが、長所を生かすことにより表面等の研究に適した装置を作ることができる。

試作した低温マニピュレーターの設計、製作にあたっては、当面、シリコン単結晶表面上のキセノンの吸着・凝縮層の構造等を研究対象とし、観察手段として、反射型高エネルギー電子線回折（RHEED）および Auger 電子分光（AES）を用いることにして、下記のような仕様を一応の目標とした。

(1) 試料の回転・移動：一軸のまわりに  $\pm 90^\circ$  の回転と、回転軸に平行な方向に  $\pm 10$  mm の移動。

(2) 最低到達温度と液体ヘリウム消費量：キセノンの吸着実験のためには、80 K 以下 50 K 程度の温度が得られることが望ましい。もちろん、到達温度が低いほど、研究の対象が拡がり有利である。液体ヘリウム消費量は液体ヘリウム容器の容量（10 l）、ヘリウム・ガスの回収系統、実験に要する時間等を考慮すると 1 l/hr 以下が望ましい。

(3) 試料の清浄化：試料に直接通電して加熱清浄化処理を行う。シリコンでは約 1200°C の加熱処理が必要であり、通電電流値は数 10 A に達する。

このほかにも、ヘリウム・ガスの流量制御による温度制御の安定性と設定精度、冷却に要する時間、試料の加熱処理と冷却のサイクルに要する時間、使い易さなど定量的に表現しにくいものも含めて、装置の性能を決める種々のパラメーターがある。この試作では、できるだけ簡単な構造・制御によって、どの程度の性能が得られるかを知ること一つの目的であった。

## 3. 構造・工作

試作した低温マニピュレーターの構成図を図 1 に示す。低温マニピュレーターは、試料の移動機構、熱交換器、

\* 東京大学生産技術研究所 第 1 部

\*\* (株) 日立製作所 日立研究所

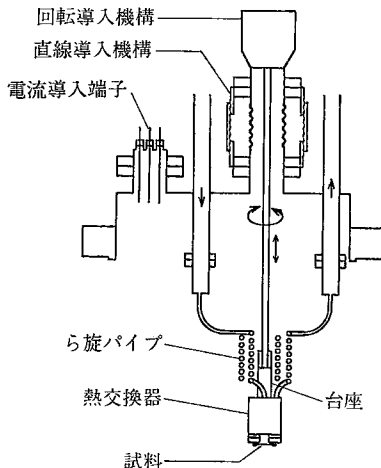


図1 低温マニピュレーターの構成

試料ホルダー、電流導入端子およびそれらを取り付けた超高真空フランジから構成されている。

### 3-1. 移動機構

回転導入機構には、ペローズを用いて大気と完全にシャ断された状態で回転運動を伝える、市販の超高真空用回転導入端子(日本真空技術(株)製、TDU-8型)を使用した。直線導入機構には、外径37 mm、内径25 mm、伸縮範囲約55~35 mmの成型ペローズを用い、外筒および二つの内筒のそれぞれにねじと逆ねじを切ったターンバックル方式の直進機構をペローズ両端のフランジに取り付けて使用した。

### 3-2. ヘリウム・ガス導入・排出パイプ

外部から熱交換器に冷たいヘリウム・ガスを導入・排出するための経路は、試料を取り付けてある熱交換器の移動と回転が可能のように柔軟でなくてはならない。しかも、数10~600 Kの熱サイクルとパイプ内外の圧力差に耐える機械的強度も必要である。ここでは、らせん状に巻いたステンレス・スチール・パイプを使用した。パイプの材質はSUS 304、外径は1.9 mm、肉厚は0.15 mmである。回転軸の周囲に、ガス導入側のパイプは径約34 mm、排出側のパイプは、さらにその外側に径約40 mmのらせん状に巻いてある。伸長はそれぞれ約2500 mmである。この方法により目標の±10 mmの平行移動と±90°の回転が実現できた。

### 3-3. 熱交換器

回転軸の先端に台座を介して熱交換器が固定されている。回転軸に対する熱交換器(試料面)の位置と角度の調整はこの台座により行う。熱交換器の内部構造を図2に示す。冷たいヘリウム・ガスは中央のパイプより導入され、放射状に開けられた孔を出てフィンの間を通り、外側のパイプから排出される。熱交換効率を高めるため

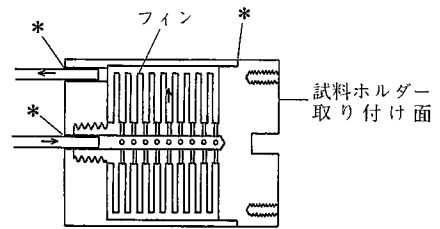


図2 熱交換器の断面 \*印はろう付けを行った部分

に9枚のフィン(表面積は全体で約60 cm<sup>2</sup>)を設け、それらと試料ホルダー取り付け部は熱伝導を考慮して、無酸素銅(純度99.99%)のブロックから削り出した一体構造になっている。これと外筒(無酸素銅製)および2本のパイプ(SUS-304)との接合には、ニッケルろう(BNi-2)<sup>3)</sup>を使用し、真空ろう付けを行った。

### 3-4. 試料ホルダー

より低い試料温度を得るためには、熱交換器から試料までの熱伝導度を良くすることに十分考慮を払う必要がある。しかも、この実験のように試料の通電加熱を行ったり、試料への電気信号を測定する場合には、試料等はアース(熱交換器)から絶縁されていなければならない。低温において電気絶縁と高い熱伝導の両方を実現するためには、ワニス等の有機接着剤を使用する方法が一般的であるが、超高真空中での使用、耐熱性という点でこれは不適當である。上記の条件を満足する材料として、水晶やサファイヤ単結晶が知られている。サファイヤは10~100 Kの温度範囲で $10^3 \text{ Wm}^{-1} \text{ K}^{-1}$ 以上<sup>4)</sup>という、高純度の金属に匹敵する熱伝導率を持っているので、素材としては適している。しかし、熱交換器から試料まで、全体の熱伝導度を考えるときには、むしろ試料ホルダー各部品間の接触面の熱伝導が問題となる。接触面における熱伝導率は、両面のなじみ具合と接触圧で決まる。<sup>5)</sup> サファイヤと金属(銅)ではなじみも悪く、サファイヤの強度の点で接触圧を大きくすることにも限度がある。ここでは、なじみをよくするためにサファイヤ板の両面をメタライズした後、金を蒸着して使用した。

試料ホルダーは図3に示すように、前述のサファイヤ板2枚、試料の両端を固定する2つの電極(無酸素銅製)、試料押え板とビス(SUS 304)、およびビスの電気絶縁用のセラミック・ワッシャーからなっている。通電用リード線と熱電対(金・鉄クロメル熱電対)は電極に固定した。

試料にはシリコンの単結晶ウエハーを用いた。表面は(111)面で、鏡面研磨されている。試料の大きさは18 mm×9 mm×0.32 mmである。試料と試料ホルダー電極の間には、電気的、熱的接触を良くするため、厚さ25 μmのタンタル箔を2枚はさんである。

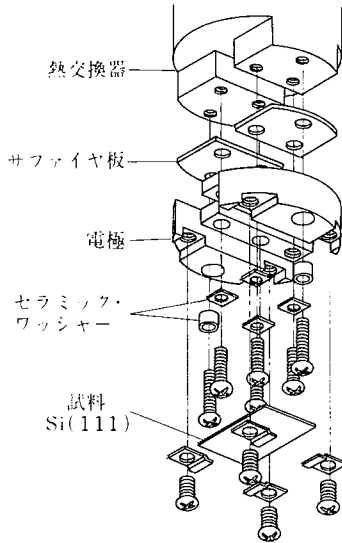


図3 試料ホルダー

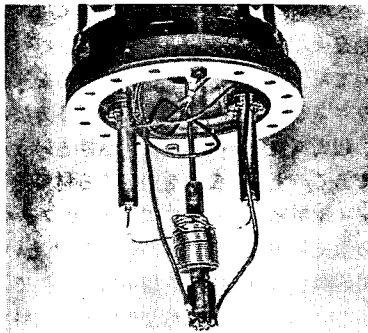


図4 完成した低温マニピュレーター

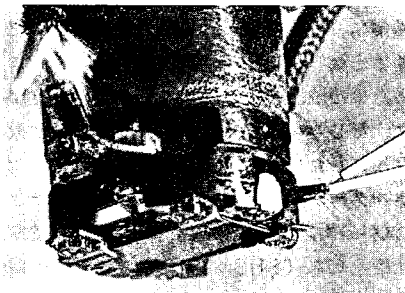


図5 試料周辺部

低温マニピュレーターの完成した状態、および試料周辺部分を図4、図5に示す。低温マニピュレーターが取り付けられているフランジは、アルミニウム・フォイルをガスケットとする外径218mmの超高真空用フランジである。低温部分の熱輻射シールドについては、ヘリウム導入側のパイプの螺旋部分は、その外側の排気側パイ

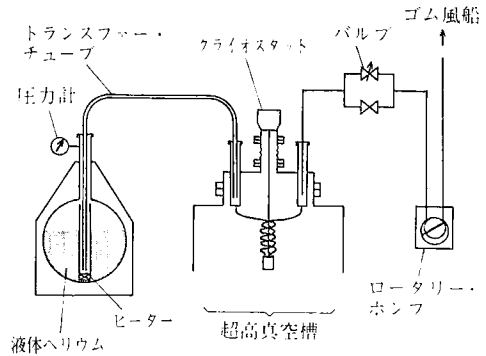


図6 ヘリウム・ガス移送システム

プにより一部シールドされているものの、その他の熱交換器、試料ホルダー等に対しては図4に見られるとおり、特にシールドを設けていない。したがって低温部分は、室温からの輻射に直接さらされている。

#### 4. 性能

##### 4-1. 実験装置

完成した低温マニピュレーターは、スパッター・イオン・ポンプ(排気速度480 l/s)、チタン・ゲッター・ポンプ(同6400 l/s)等の排気系、および気体導入系を備えた内径450mm、容積240 lの超高真空槽に取り付けた。試料表面観察のためのRHEED、AES装置も同時に取り付けた。この系の到達圧力は、20時間のベーキング操作(温度200~300°C)の後、 $10^{-8}$  Pa以下であった。

ヘリウム・ガスの移送システムを図6に示す。冷たいヘリウム・ガスは、容量10 lの液体ヘリウム容器から、蒸発してくる気体だけを取り出す構造のトランスファー・チューブを使い、低温マニピュレーターの導入側に送られる。排出側からは、バルブを介してロータリー・ポンプ(排気速度640 l/min)でヘリウム・ガスを吸引し、ゴム風船に回収する。バルブは粗調整用(Nupro社製、B-4 J)と微調整用(同、B-2 MG 4)を並列に接続し、試料の温度設定は、これらのバルブを使いヘリウム・ガスの流量を手動で調整することにより行った。ガスの流量はバルブのコンダクタンスだけでなく、液体ヘリウム容器内の圧力にも依存するので、トランスファー・チューブのガス取り入れ側先端に組み込んであるヒーターを用いて液体ヘリウムを気化させ、容器内の圧力を一定(通常大気圧)に保った。

##### 4-2. 到達温度とヘリウム消費量

低温マニピュレーター、トランスファー・チューブとも室温の状態から冷却を開始すると、試料ホルダー部の温度は図7のような変化を示した。このときバルブは全開である。約50分で50 Kに達し、その後下降速度は遅くなり、最低温度約40 Kに達した。

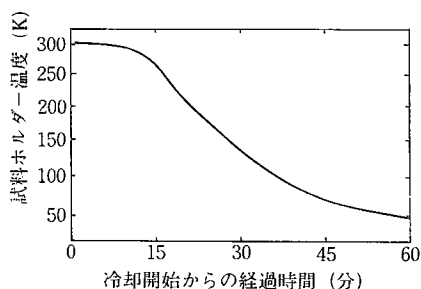


図7 冷却開始後の試料ホルダーの温度降下

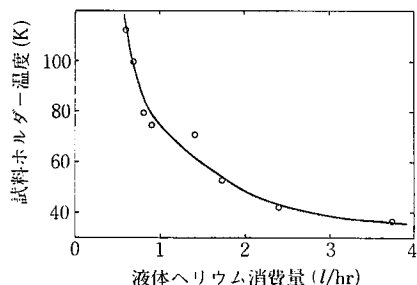


図8 試料ホルダー温度と液体ヘリウム消費量の関係

試料ホルダー温度と液体ヘリウム消費量との関係は図8のようになった。50 Kでの消費量は約1.9 l/hrであった。

#### 4-3. 試料の清浄化処理

通電加熱による試料の最高1200°C程度の加熱，および焼鈍等の操作により，清浄なシリコン(111)表面の表れていることを示すとされている，(7×7)構造の回折パターンがRHEEDにより観察された。しかし(7×7)パターンが見られたのは，試料全面ではなく一部分においてであった。これは試料とホルダーの間の熱的・電気的接触が均一でなく，試料温度が一様に上昇しなかったためである。

清浄化操作は試料の冷却後も必要に応じて行うことができた。その際には，加熱操作後約15分で50 K以下の温度に再冷却することができた。冷却開始時に要する時間(約50分，4-2参照)に比べて短いのは，トランスファー・チューブ等がすでに冷却されているためである。

#### 5. 考 察

本試作機の性能は，到達温度，液体ヘリウム消費量の点では当初の目標を達成することができた。試料の移動，回転機構に関しては，その耐久性が問題である。現在までに行った数回のベーキング，延べ約40時間のヘリウム・ガスによる冷却，その間の移動・回転操作によっては，材料や接合部分に割れや真空リーク等のトラブルは発生していない。実際に実験に使用した際には，試料ホルダーに不満な点はあったものの，バルブの手動操

作による試料温度の設定と，その安定性は±0.3 K程度に維持でき，また清浄化操作や，その後の再冷却に要する時間の点でも，実験の要求に対して満足できるものであった。

今後改良すべき方向は，試料の動きの自由度を多くすること，到達温度を低くすること，ヘリウム消費量を少なくすること，温度の自動制御などである。動きの自由度を増すには，駆動機構としては，xyz軸方向の直進，傾斜，回転等が適宜選択できる超高真空用マニピュレーターが市販されているので，それを利用するのが最も簡便である。その動きに対応できる柔軟なヘリウム・ガス導入排出パイプを用意することが一番の難点であろう。

到達温度，ヘリウム消費量に関しては，トランスファー・チューブや熱交換器部分に適当な熱放射シールドを設けるのが有効であるが，この方法は構造が複雑になるため，動作の自由度を多くしようとする場合には障害となる。試料ホルダー各部分の熱的接触を良くすることも，試料温度を低くするのに効果がある。そのためには，部品数を減らしたり，ろう付け加工を行って機械的接触部を少なくする配慮が必要である。試料ホルダーに関しては，このほか，試料温度の均一性，正確な試料温度測定，電気絶縁，試料の清浄化の方法，耐熱性など改良の余地が多い。

試料の温度制御は，短時間(数分)の安定性を問題にするならば，バルブの手動操作で十分であるが，長時間一定の温度を保ったり，任意のプログラムに従って温度を変化させるためには，自動制御系が必要である。手動バルブの代わりに電磁弁を使い，PID方式を用いてそれを制御することにより，数時間にわたり±0.1 K以内の温度安定性を得ることができた。さらに，試料の通電加熱も併用すれば，温度の変動を小さくし，かつ，より速い制御された温度変化を与えることも可能であろう。

この試作機的设计・製作にあたり，東京大学工学部岡野達雄氏，富士テルモ(株)久呉高博氏，(株)東理社，日本真空技術(株)，京都セラミック(株)各社の方々より多くの協力をいただいた。ここに感謝の意を表する。

(1981年2月25日受理)

#### 参 考 文 献

- 1) 荒川：真空，24 (1981) 116.
- 2) G. Killiping: Cryogenics, 13 (1973) 197.
- 3) JIS Z 3265.
- 4) 田沼静一編：低温(共立出版，1974)p. 286.
- 5) R. Berman: J. Appl. Phys. 27 (1956) 318.