

## 規格外真空シールの試作～金線 O リングの作製と使用方法～

宮井颯汰<sup>1</sup>・平山智晴<sup>1</sup>・徳丸瑛士<sup>1</sup>・宮ノ内康太<sup>1</sup>艸分倫子<sup>2</sup>・松本佳久<sup>1,\*</sup>・板倉明子<sup>2,\*\*</sup><sup>1</sup>大分工業高等専門学校 ☎ 870-0152 大分県大分市大字牧 1666 番地<sup>2</sup>物質・材料研究機構 ☎ 305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1

(2024 年 11 月 27 日受付；2024 年 12 月 16 日掲載決定)

## Prototype Production of Non-standard Vacuum Seals～How to Make and Use Gold O-ring～

Souta MIYAI<sup>1</sup>, Tomoharu HIRAYAMA<sup>1</sup>, Eiji TOKUMARU<sup>1</sup>, Kouta MIYANOUCHI<sup>1</sup>,  
Tomoko KUSAWAKE<sup>2</sup>, Yoshihisa MATSUMOTO<sup>1,\*</sup> and Akiko N. ITAKURA<sup>2,\*\*</sup><sup>1</sup>National Institute of Technology, Oita College, 1666 Maki, Oita 870-0152, Japan<sup>2</sup>National Institute for Materials Science, 1-2-1 Sengen, Tsukuba, Ibaraki 305-0047, Japan

(Received November 27, 2024 ; Accepted December 16, 2024)

In order to secure the sample to the sample holder and create a structure that serves as a partition between the gas introduction system on the back of the sample and the ultra-high vacuum measurement chamber, a vacuum seal must be completed at the same time as the sample is fixed. We searched and tried sealing methods to perform permeation measurements on samples with several mm size, since standardized products such as international ConFlat flanges cannot be used for the vacuum seals in these size.

KEYWORDS : vacuum seals, gold O-ring, hydrogen permeation

## 1. はじめに

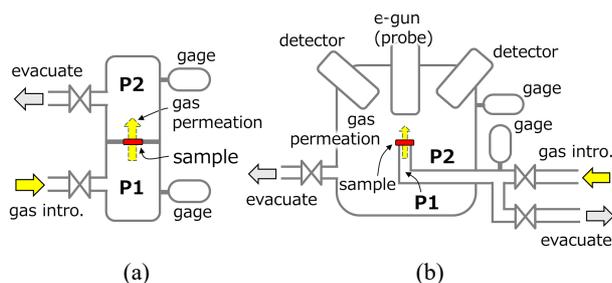
電子顕微鏡観察や表面分析など、計測に真空環境を必要とする実験手法は多く、我々の研究手法であるオペランド水素顕微鏡 (Operando Hydrogen Microscope, 以下 OHM) による、水素透過位置の可視化実験もその一つである。計測に必要な超高真空環境を保持するためには、排気速度の大きなポンプで排気することはもちろん、真空容器をガス放出の少ないステンレス鋼で構成し、真空シールについても JIS や ISO 規格に従ったコンフラットフランジと、銅ガasketを用いるのが一般的である<sup>1)</sup>。気体導入が必要な場合、ガス配管に用いるスウェジロック継手や VCR 継手の接合部品も超高真空に耐えうる<sup>1~4)</sup>。

我々の OHM は、試料背面から試料表面に継続的に水素

を透過させることで、表面からの電子励起脱離測定を時間制限なく行う装置である<sup>5,6)</sup>。これまで、ステンレス鋼をはじめとする鉄鋼材料、パラジウム、バナジウムなどの高水素透過材料について、水素透過の実験を行い、透過位置の可視化を行ってきた<sup>7~10)</sup>。このような透過試験において、試料そのものが超高真空環境を要する測定室の隔壁となっており、その結果、真空容器外の大気圧と、真空容器内の間だけでなく、試料の裏面と測定面でもそれぞれ真空シールが必要になる。ここでの真空シールは試料を固定し、同時に計測対象であるガスの一次側と二次側を隔て、その真空シールで超高真空を保つ、という非常に重要な役割を果たす (Fig. 1 (a) 参照)。OHM では、試料の裏面は一次側供給水素 (P1 : 100 Pa ~ 1 MPa) に面しており、二次側の水素透過面である試料表面は超高真空 (P2 : 10<sup>-7</sup> Pa 台) に面している (Fig. 1 (b) 参照)。また、OHM では一次側から水素を導入しながら、試料を透過してきた水素を、走査型電子顕微鏡の電子源を利用

\* E-mail : matumoto@oita-ct.ac.jp

\*\* E-mail : itakura.akiko@nims.go.jp



**Fig. 1.** (color online). Schematic diagrams of a setting of permeation experiment (a), and visualization experiment for permeated hydrogen (b).

して電子励起脱離させ、その透過位置を実時間で観察する。そのため、透過側である P2 の圧力は、常に超高真空に保つ必要がある<sup>6)</sup>。

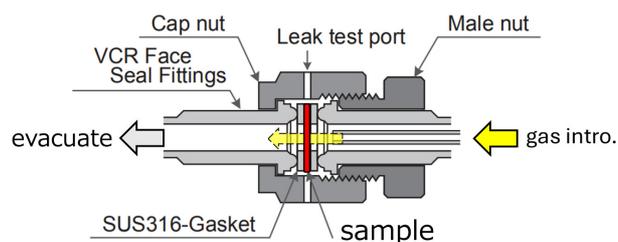
OHM 以外でも、超高真空環境で計測する微量ガスの透過実験には、この試料前後で P1, P2 を区分する真空シールが必要である。試料を供給側のパイプに溶接する、あるいは既製の真空シールを利用できる形やサイズに合わせることであれば問題はないが、試料の硬さや耐熱性の問題で、溶接や規格品の使用ができない場合がある。我々の実験も、透過試験に用いる試料の真空シールに規格品を利用することができなかつたため、いくつかの古典的な真空シール手法を検討した。特に直径 10 mm 程度の小型の薄板試料の透過測定を行う際の、超高真空に対応できる真空シール法を探索し、試用したので紹介する。

## 2. 透過実験のための真空シール法

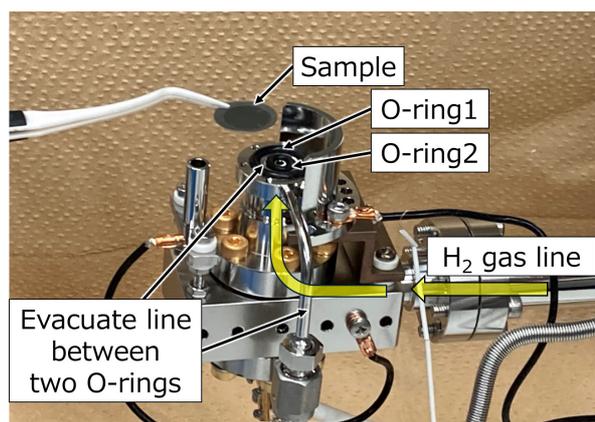
固定用真空シールは、銅ガスケットをはじめとする平型ガスケットやメタル中空 O リングなどの金属ガスケットと、高分子材料のエラストマー O リングなどの非金属ガスケットがある<sup>11)</sup>。柔らかな金属で平板型・O 型のガスケットを作り、その弾性力を利用した真空シールも存在する<sup>12, 13)</sup>。また、真空用配管に用いる VCR 継手<sup>2, 3)</sup>を用いることも可能である。

Fig. 2 は VCR 継手のガスケット位置に透過計測用の試料をステンレスのガスケットで挟み込んで固定した例である<sup>3)</sup>。VCR 継手は耐熱性が高いため、試料を VCR 継手ごと炉に入れて加熱し、高温 (室温~773 K) の実験を行うことが可能である<sup>3)</sup>。

柔らかい、あるいは脆いなどの理由で試料が、VCR 継手やメタル中空 O リングの締め付けトルクに耐えられず、破損してしまう場合がある。このため、柔らかいエラストマー O リングを用いる。真空容器環境を作るための、ベーキング温度に耐えるエラストマー O リングの材質として、Viton や Kalrez などが知られている<sup>14, 15)</sup>。しかし、エラストマー素材は水素やヘリウム等の微小分子を透過



**Fig. 2.** (color online). Sample holder using a VCR fitting. Original figure was in reference 3).

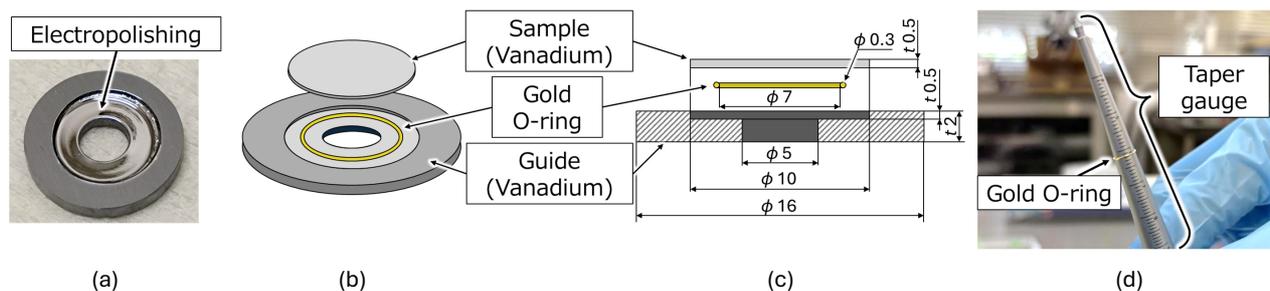


**Fig. 3.** (color online). Sample holder using double O-ring.

させてしまうため、超高真空には対応できないといわれている。そこで我々はエラストマー O リングを二重に配置してシールし、二本の O リングの間を真空排気する方法を用いた (Fig. 3 参照)。二重 O リングシールにより、金属の中空 O リング利用時と同様、 $10^{-8}$  Pa 台の到達圧力を得ることができている。

次に、サイズが小さく、そのままでは既存のメタル中空 O リングのホルダーに取り付けることができない試料の真空シールを検討した。測定温度領域が室温から 300°C (573 K) であることから、金属系のシール材が適している。より小型の金属のメタル中空 O リング (既製品) を用いることも検討したが、適切なサイズがなかつたため、超高真空に用いることが可能な規格外サイズの金属シールを用いることにした。

金属の持つ弾性力を利用する金属シールには、アルミニウム、インジウム、金、など柔らかな金属を用いた金属ガスケットが適している<sup>12, 13)</sup>。しかし、インジウムは融点が 429 K と低く、我々の実験温度では用いることができないため、融点が 1337 K である金を選んだ。金シール用のガスケットは市販されておらず、サイズも調整したかったため、金ガスケット (金線 O リング)、および真空シールのための治具などをすべて自作した。以下に作り方とその利用を紹介する。



**Fig. 4.** (color online). Overview of sample fixation method (a) sample fixture made by vanadium, (b) schematic diagram of sample setting on vanadium fixture, (c) side view of (b), (d) expander of inner diameter of Au ring using a coneshaped rod.

### 3. 試料および金シール用治具の作製

#### 3.1 設計

既存のメタル中空Oリングを用いた試料ホルダーは、直径  $16 \pm 0.5$  mm、厚さ 0.1–1.5 mm までの試料を固定・真空シールすることができる。しかし、一方向凝固法を用いて粗大結晶粒に調整したバナジウム母材から切り出せる試料サイズは、直径 10 mm までであった。そこで、直径 10 mm の試料を、直径 16 mm サイズの治具に固定して一体型とし、直径 16 mm サイズの試料として試料ホルダーに取り付けることを考えた。

**Fig. 4** (b), (c) に金シールの概要および寸法を示す。試料、金ワイヤ、治具の三つのパーツから構成される。中央の直径 5 mm の全貫通穴は、水素ガス導入のためにあけており、金シールをすることで、一次側と二次側を隔てている。

#### 3.2 試料固定治具の作製

治具材料は、膨張率の違いや超高真空環境下での放出ガス、高温で水素環境中に晒した時の影響を考慮し、試料と同じバナジウムを用いた。直方体の形状からマシニングセンタ (ROBODRILL  $\alpha$ -D14MiB5 Plus・FANUC CORPORATION) により外径および中心穴を加工した後、立フライス盤 (2RC・IWASHITA INDUSTRIAL CO., LTD.) により段つけ加工を行い **Fig. 4** (c) の形状を作った。段つけ部分はゴム砥石で 1000 番まで研磨後、電解研磨により鏡面仕上げをした。また、一次側 (水素供給側) となる面は、バンドソーにより切り出しを行い、断面は 180 番の耐水研磨紙を用いて荒削りをしたのち、アルミナ砥粒耐水研磨紙を用いて、400 番から 1000 番まで研磨を行い、厚さを 2 mm まで調整した。作製した治具を **Fig. 4** (a) に示す。

#### 3.3 金線Oリングの作製

金のOリングも自作した。金線をシール部分の円周より少し短めに、真っ直ぐ (金線に対して垂直、かつ断面

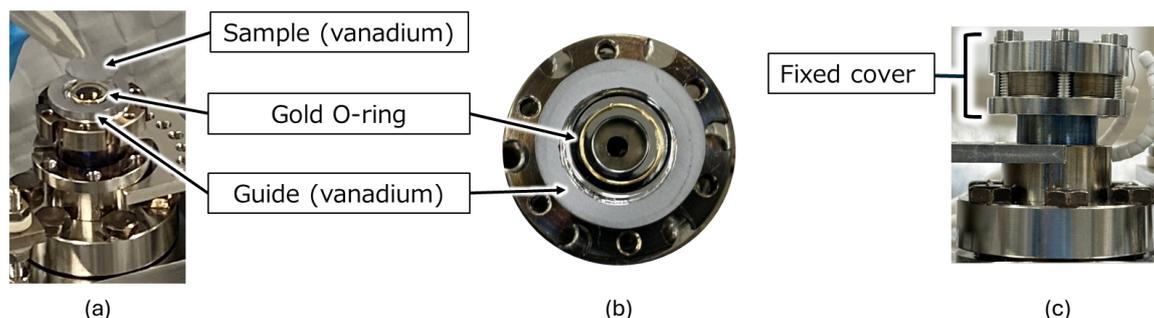
が平坦) になるようにニッパーでカットした。金線をシール部分の直径よりも 1 割程度小さいものに巻き付けて円形にし、末端同士が少し重なるような曲率に調整する。その後、両端を突き合わせることによって、カットした面が互いに押し合う状態にする。この形で固定し、突き合わせたところをマイクロトーチ (有限会社 光信理化学製作所) で溶接した。溶接によって目的のサイズと変わってしまうことは避けられないため、わずかに小さめになるよう作製する。次に、溶接後のリングを、内径が目的のサイズ (7 mm) になるよう、テーパーゲージで伸ばす (**Fig. 4** (d) 参照)。実際には、線径 0.7 mm、0.5 mm、0.3 mm の 3 種類のリングを準備し、使用できるものを選んだ。線径が太い方が溶接しやすく、シールもしやすいが、ゲージで平均的に伸ばすのが困難である。実験では線径 0.3 mm の金線を用いて作ったOリングを使用した。

#### 3.4 試料取り付け

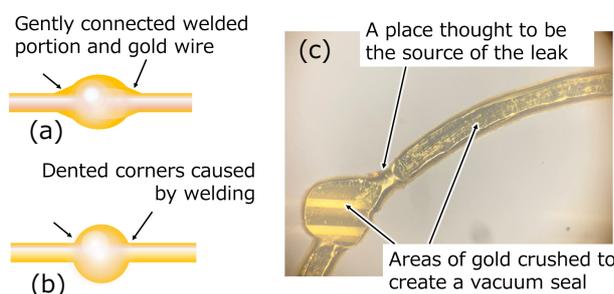
金線Oリングの取り付けの様子を **Fig. 5** (a), (b) に示す。治具をメタル中空Oリングの上にセットし、金線Oリングを治具のガス導入穴と同心円になるように配置した。次に、試料取り付けの様子を **Fig. 5** (a) に示す。試料を金線Oリングの上に位置がずれないようにセットし、**Fig. 5** (c) に示すように、カバーを取り付けてトルクレンチにより 2.0 N·m まで、0.2 N·m 間隔で段階的に締め付けた。

### 4. 実施例

試料を前述のとおり設置してリークチェックを行ったところ、初回のテストでは試料固定部分からの漏れが認められた。金線Oリングを取り外して光学顕微鏡で観察すると、潰れたワイヤ面に窪みが確認された (**Fig. 6** (c) 参照)。 **Fig. 6** (b) で示すような溶接時にできてしまった窪みは、圧縮した後でも十分に消えず、リークの原因になったと考えられた。マイクロトーチによる溶接は、Oリング一つ一つの個体差が大きく、 **Fig. 6** (a) のように、溶接部分と金線がなだらかにつながっているのが理想だ



**Fig. 5.** (color online). Installing the sample, guide and gold O-ring. (a) attach the sample, (b) top view of (a), (c) side view of (a).



**Fig. 6.** (color online). Schematic diagram of gold wire welds and a leaking gold wire gasket. Diagram of gold wire with a gradual change in thickness at the weld (a), and it with corners (dents) on both sides of the weld (b). Photograph of a used gold wire gasket with a leak (c).

が、実際には (b) のような形につながっているものが多かった。使用前に、光学顕微鏡で窪みがないことを確認した金線 O リングを使用しところ、ヘリウムのリークチェックで漏れのない真空シールができた。計測室の到達圧力も、メタル中空 O リングでシールした時と同程度の  $10^{-7}$  Pa 台となったため、水素透過実験を開始することができた。この金シールを用いて行ったバナジウムの水素透過実験に関しては、別の論文で報告する。

## 5. ま と め

本研究では、自作の金線 O リングによる超高真空のシールを紹介した。この方法を用いることで、単一の試料ホルダーにセットできる試料サイズが格段に増えることになった。今回は、バナジウムを用いて試料と治具を作製したが、他の金属でも応用できると考えられる。オペランド水素顕微鏡の実験では、一つの試料に対する計測期間が長く、また、いったん固定した試料で複数回の実験を行うことができる。よって我々の研究では、自作の金線 O リングによる真空シールによってサイズの異なる試料 (大きなサイズが作れない材料) の観察が可能となり、水素可視化研究に大きく貢献したと言える。

しかし、利用できる金線 O リングの歩留まりは高くはなく、取り外しをしない部位の真空シールであればよいが、何度も取り外し、接合を繰り返す場合には、VCR 接続など、他の簡易な手法を用いる方がよいと思われる。

## 謝 辞

金線 O リングに関するご助言をいただいた学習院大学の荒川一郎教授、産総研の秋道齊博士に感謝申し上げます。また、金線 O リングの溶接をしていただいた NIMS 加工センター、治具作製にご協力いただいた大分高専技術部の皆様に感謝申し上げます。特に、技術が必要なマイクロトーチによる金の溶接は、NIMS 硝子工作室の川崎昌彦様にご協力いただきました。試料固定治具の加工は、大分高専技術部設計創造室の米津裕人様にご協力いただきました。また、治具に用いるバナジウムブロックをご提供いただいた NIMS の村瀬義治博士に感謝申し上げます。一方向凝固法により粗大結晶に成長させたバナジウム試料をご提供いただいた NIMS の西村陸博士に感謝申し上げます。この研究は、NIMS 連携拠点推進制度の支援を受けて行われました。

## 文 献

- 1) K. Ashida, H. Miyake, M. Matsuyama and K. Watanabe : *Shinku* **32**, 411 (1989). (in Japanese).
- 2) T. Kubo, N. Miyashita and H. Ishimaru : *Shinku* **31**, 808 (1988). (in Japanese).
- 3) Y. Shirasu, T. Nambu, K. Omata, H. Yukawa and Y. Matsumoto : *Mater. Trans.* **60**, 2174 (2019).
- 4) 吉永英雄, 中川宏司, 櫻井星児, 湯川 宏, 松本佳久, 南部智憲, 西村 陸 : まてりあ **57**, 1 (2018).
- 5) N. Miyauchi, K. Hirata, Y. Murase, H.A. Sakaue, T. Yakabe, T. Gotoh, S. Takagi and A.N. Itakura : *Scr. Mater.* **144**, 69 (2018).
- 6) N. Miyauchi, T. Yakabe, Y. Murase, M. Kitajima, S. Takagi and A.N. Itakura : *J. Vac. Sci. Technol., A* **42**, 013201 (2024).

- 7) N. Miyauchi, T. Iwasawa, Y. Murase, T. Yakabe, M. Kitajima, S. Takagi, T. Akiyama, S. Aoyagi and A.N. Itakura : *Appl. Surf. Sci.* **527**, 146710 (2020).
- 8) A.N. Itakura, N. Miyauchi, Y. Murase, T. Yakabe, M. Kitajima and S. Aoyagi : *Sci. Rep.* **11**, 8553 (2021).
- 9) T. Fujimaru, Y. Kimoto, S. Sato, N. Miyauchi, M. Nagamori, T. Kusawake, A.N. Itakura and Y. Matsumoto : *Vac. Surf. Sci.* **66**, 608 (2023). (in Japanese).
- 10) A.N. Itakura, N. Miyauchi, M. Kitajima, T. Yakabe and H. Yoshida : *Vacuum* **228**, 113471 (2024).
- 11) T. Kanno and Y. Kawahara : *Shinku* **42**, 821 (1999). (in Japanese).
- 12) F. Kimijima : *Shinku* **13**, 118 (1970). (in Japanese).
- 13) Y. Sato and Y. Akiyama : *Shinku* **13**, 133 (1970). (in Japanese).
- 14) バイトン, 製品選択ガイド, <https://www.viton.com/ja/products/product-selection> (最終アクセス 2024 年 11 月 10 日)
- 15) カルレッツ, ホームページ, <https://www.dupont.co.jp/kalrez.html> (最終アクセス 2024 年 11 月 10 日)