

ELECTRICAL BREAKDOWN CHARACTERISTICS OF VACUUM DEGASSED OXYGEN FREE COPPER ELECTRODES IN VACUUM

Shinichi KOBAYASHI, Yoshio SAITO\*, Yoshiki YAMAMOTO\*\* and Yasuchika NAGAI\*\*

Saitama University, 255 Shimo-ookubo, Urawa, Saitama, 338

\*National Laboratory for High Energy Physics, 1-1 Oho, Tsukuba, Ibaraki, 305

\*\*Hitachi Cable Ltd., 3550 Kidamari, Tsuchiura, Ibaraki, 330

ABSTRACT

The influence of in situ electrode surface cleaning, gas contents, thermal annealing of electrodes and the electro-chemical buffing on electrical breakdown characteristics under ultrahigh vacuum conditions is described. The electrode material used is vacuum degassed oxygen free copper satisfying ASTM-F68 Class 1, Class 3 and Class 5 grades.

真空中における無酸素銅電極の絶縁破壊特性

1. まえがき

粒子加速器, 大電力送信管, 衛星搭載用電気機器, 真空遮断器等の信頼性, 性能は, 真空ギャップの絶縁特性により左右されることが多い. ここに述べた機器で使用される電極材料は, 通常無酸素銅であり, 多くの場合雰囲気は超高真空である. 超高真空中でのギャップの絶縁破壊は, コンディショニング後には, 相対的に電極表面状態の影響が低下し, 電極素材(バルク)の特性が及ぼす影響の比重が増大するものと考えられる. 電極表面の効果とバルクの効果とを分離して実験を行なうには, 実験に供するまでの電極の履歴(素材の出自, 純度, 加工法, 前処理等)を規定し, かつ超高真空の雰囲気中で in situ 表面処理を行ない, 絶縁破壊特性の測定を行なうことが必要である. 本研究は, このような立場から, バルクの特性および加工方法が明らかにされている無酸素銅電極を用い, 超高真空中で in situ 表面処理を行ない, 絶縁破壊特性に対してバルクの特性が及ぼす影響を明らかにすることを目的として行なわれたものである. ここでは, これまでに得られている結果を述べる.

2. 無酸素銅材料の特性

真空中において絶縁耐力が高い電極材料は, 一般に吸蔵ガス量の少ない材料である[1]. 米国ASTMにおける電子管用無酸素銅の規格F68では, 結晶組織中に見られる空孔等の欠陥の程度により, 無酸素銅のグレードをClass1~Class5に分類している. 図1はASTM-F68

の組織判定に用いられる結晶組織の比較図[2]である. 同図中の黒点は, 液相から放出されたガスが脱出できずに固相中に残留した結果生じたものである. 従って, ガス成分は明らかではないが, この黒点が少ない組織ほど吸蔵ガス量が少ないものと見なすことができる.

本実験では, 真空中で脱ガス処理が施され, 図1のClass1, Class3およびClass5相当の無酸素銅を素材とし, 図2に示す形状に加工された電極を使用した. 使用した無酸素銅の分析値は, Class1は純度99.996%, 水素濃度0.3ppm, 酸素濃度3ppm以下であり, Class5は純度99.996%, 水素濃度1ppm, 酸素濃度5~8ppmである.

電極表面は, 旋盤加工を主加工とし, その後必要に応じ所要の処理を施した. 表面研磨は, 研磨砥粒, バインダーあるいは溶剤等の各種不純物の残留を来すことになり, 表面を汚染させていることにもなりかねない. その点旋盤加工はそのような可能性が最も低いと考えられる. より厳密には, 切削油, 加工者まで規定すべきであるが, 今回はそこまでは行なっていない.

3. 実験装置および方法

図3に実験装置の概略を示す. 実験装置は, 三つの真空容器からなり, ゲートバルブにより連結されている. 試料導入用真空容器では, 供試電極の導入およびアルゴンイオンビームによる電極表面浄化処理(in situ 処理)を行なう. XPS装置では, 供試電極の表面分析を行ない, 絶縁破壊試験用真空容器では, 供試電極の絶縁耐力を測定する. これらの真空容器間で

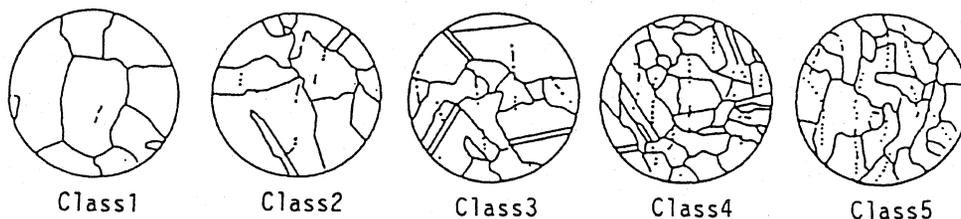


図1 ASTM-F68規格による無酸素銅結晶の比較図[2]

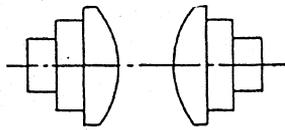


図2 供試電極形状

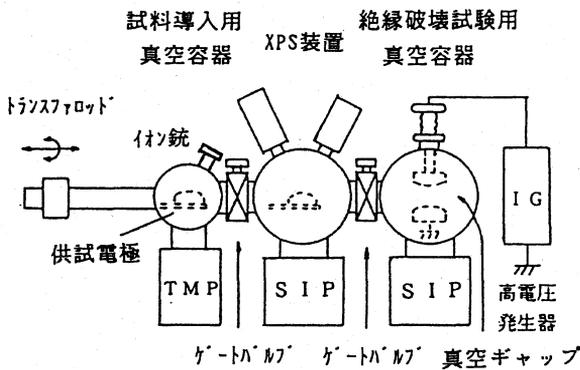


図3 実験装置概略図

の供試電極の移動にはトランスフロッドを用いる。

印加電圧は衝撃電圧発生装置 (IG) から真空ギャップに供給され、その最大尖頭電圧は100 kV、波頭長64  $\mu$ s、波尾長700  $\mu$ sの衝撃電圧である。

試料導入用真空容器は、ターボ分子ポンプ (TMP) により排気され、到達圧力はベーキング後で $7 \times 10^{-7}$  Paである。それ以外の真空容器はスパッタイオンポンプ (SIP) により $5 \times 10^{-7}$  Pa以下に維持されている。

これらの装置は、シールドルームの中に設置され、絶縁破壊時の誘導雑音の影響を除去できるようにしてある。電圧、電流波形は、シールドルームの外に設置されたデジタルメモリに記録した。

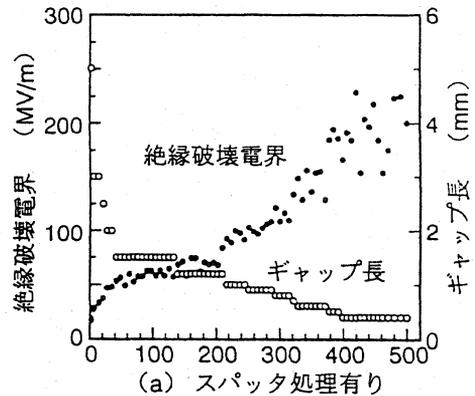
イオンビームの照射は、エネルギーが2keV、照射時間は一点あたり10分とし、電極表面の中心付近5点に対して行なった。また、陰極、陽極両方の電極表面に対してスパッタ処理を行なった。なお、ビーム電流およびビーム径は今回測定していない。

絶縁破壊試験は次の手順で行なう。供試電極を絶縁破壊試験容器に移送し、ギャップ長を所定の値 (通常5 mm) に調節した後、高電圧を印加して絶縁破壊を発生させる。絶縁破壊を繰り返すに従い破壊電圧が上昇する (コンディショニング効果) ため、本実験装置の最大印加電圧 (100 kV) では絶縁破壊が生じなくなる。そこで、次にギャップ長を短縮し、再び絶縁破壊が生ずるようにして実験を継続する。以下順次このような手順を繰り返し総計500回絶縁破壊試験を行なう。

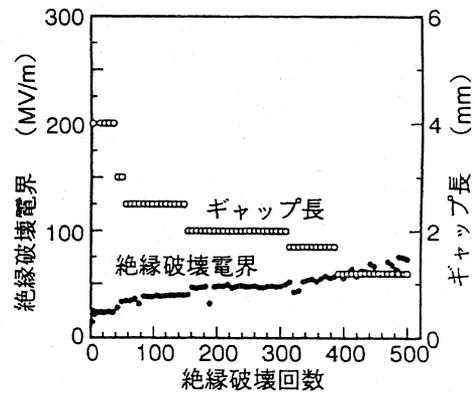
#### 4. 絶縁破壊特性

##### < 4・1 > 電極表面スパッタリングの効果

Class1電極表面にスパッタリング処理を施した場合の絶縁破壊電界に及ぼす効果を図4に示す。スパッタリング処理を施した場合、試験開始当初5 mmであったギャップ長が、400回の絶縁破壊後には0.4 mmにまで短縮されており、それに伴い絶縁破壊電界 (絶縁破壊



(a) スパッタ処理有り



(b) スパッタ処理無し

図4 絶縁破壊特性に対するスパッタリング処理の効果. Class1電極を使用。

電圧/ギャップ長)が上昇している。それに対して、施さない場合は、コンディショニング効果は、認められるものの、それほど顕著ではない。

第一回目の絶縁破壊電界は、in situ処理の場合18 MV/m、処理なしでは16 MV/mであり、どちらの場合も大差ないが、繰り返し絶縁破壊試験後の絶縁破壊電界を比較すると、前者では200 MV/m、後者では90 MV/mとなってin situ処理の効果がより明瞭となる。この結果は、電極表面処理の効果が、その処理を行なった直後には反映されず、絶縁破壊を繰り返すに従い何らかの形で初期状態として記憶されていた (一種のメモリー効果) ものが姿を現してくることを示している。従って、in situ表面処理のみでは、実用上重要な第一回目の絶縁破壊電界は改善されないこと、即ち、電極表面の清浄化処理のみでは絶縁耐力の向を図るには不十分であることがわかる。同時に、十分なコンディショニング効果を得るためには、in situでの表面清浄化処理が必要であることも示している。このことは、コンディショニング処理により耐電圧向上を図るには、例えばガスコンディショニング、スパークコンディショニングあるいは電極加熱等の単一の処理では不十分であることを示唆している。

図3に示されるXPS装置による電極表面の分析結果の一例を図5に示す。スパッタ前の電極表面には酸

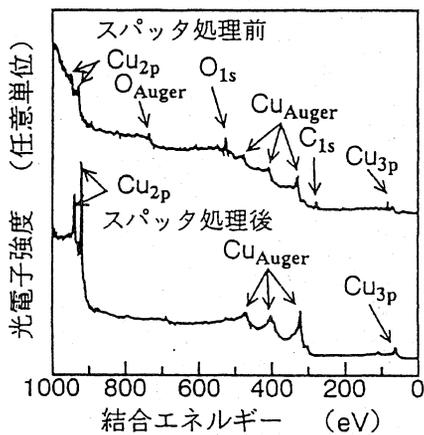


図5 スパッタ処理前後の電極表面状態

化物あるいは有機物に起因するC, Oのピークが認められ, Cuのピークは非常に小さい。Cu<sub>2p</sub>のピークを形成する光電子の固体内での平均自由行程は0.5 nm程度であるので[3], 真空容器に導入した後の電極表面は, 0.5 nm程度の厚みの酸化物, 汚染物に被われ, 電極素材の表面は露出していないことがわかる。それに対して, スパッタ処理後の電極表面では, C, Oのピークが消滅しCuのピークが明瞭となっている。

#### < 4・2 > 吸蔵ガスの影響

図6にはClass1とClass5の電極の絶縁破壊特性を示す。同図(a)がClass1電極, (b)がClass5電極の結果である。どちらの電極も顕著なコンディショニング効果が認められるが, Class1電極の方が幾分良好な結果となっている。絶縁破壊特性には電極個々のバラツキがあることが考えられるので, 複数のサンプルを準備し試験を行なった。その結果を図7に示す。この図から, まず, 第一回目の絶縁破壊電界は, 電極材料の規格によらず, いずれもほぼ同様の値となっていることがわかる。実用的には, 第一回目の破壊電界の値が高いことが望ましいが, この点については電極材料のグレードを高めても改善が見られない。それに対して, 500回目では絶縁破壊電界が上昇し, その平均値には規格

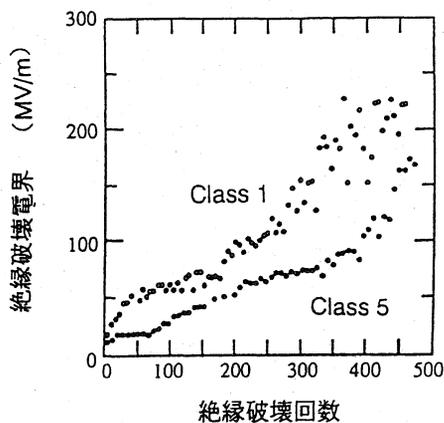


図6 Class1およびClass5電極の絶縁破壊特性

による相違が認められる。さらに, グレードの高い電極ほど絶縁破壊電界のバラツキが小さくなっている。この結果から, 吸蔵ガス量の差が, コンディショニング効果の差となって現われると考えることができる。

このような電極材料純度の規格によるコンディショニング効果の相違が認められたのは, in situ 表面清浄化処理が施された場合においてであり, 旋盤による切削加工と超音波洗浄のみの前処理の電極の場合には, このような相違を見出すことは困難であった。これは, 図5に示したように, in situ 清浄化処理が施されていない電極では, その表面が酸化物, 汚染物に被われているため, それらの物質による影響の方が電極素材の特性よりも支配的となるためである。

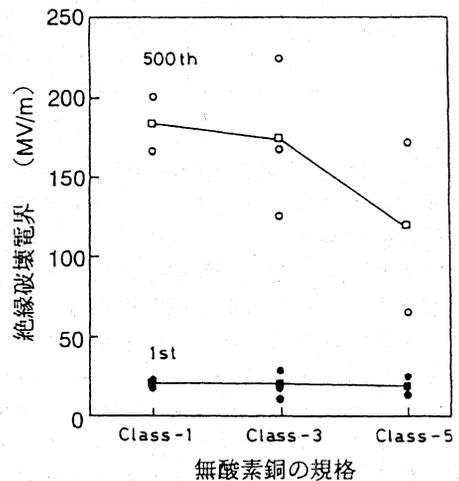


図7 無酸素銅の規格と第一回目および500回目の絶縁破壊電界

#### < 4・3 > 電極表面研磨の影響

金属表面の超仕上げ法として電解複合研磨法が開発され極真空容器, 超高純度ガス配管等に应用されている[4]。この研磨法は, 機械研磨と電解研磨とを併用するもので, 鏡面を得ることができる。従って, 電極表面の研磨に応用すれば, 電界放射, ガス吸着のもととなる微小な凹凸を除去でき, 絶縁破壊特性を改善

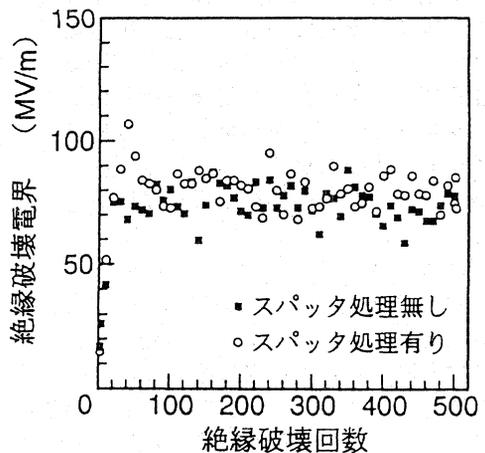


図8 電解複合研磨電極の絶縁破壊特性

できることが期待される。図8に試験結果の一例を示す。これまでに示した絶縁破壊電界の特性と大きく異なる点は、コンディショニング効果が飽和するまでの絶縁破壊回数が非常に少ないことである。この結果は、電解複合研磨が施されたステンレス鋼電極に対して行なわれた結果[5]と定性的に一致している。

図8において、第一回目の絶縁破壊電界に注目すると、スパッタ処理が施された電極の場合16MV/m、無処理の場合17MV/mである。これらの値は、図7に示されている値とはほぼ同様であり、鏡面に研磨しても、絶縁破壊電界の改善には直接寄与しないことがわかる。即ち、このことは、注意深く旋盤加工された電極表面の凹凸は、絶縁破壊電界に大きな影響を及ぼさないことを意味している。また、コンディショニングにより到達する絶縁破壊電界も、図7に比べ改善されているとはいえない。ここでの試験結果から見ると、電解複合研磨のような鏡面加工は、絶縁破壊電界の改善に直接的に寄与するというよりも、コンディショニング処理を迅速に終了させる効果を有していると考えられる。

#### < 4・4 > 電極の熱処理の影響

金属の吸蔵ガス量は熱処理によっても変化させることができるので、図2の形状に加工されたClass1グレードの無酸素銅電極を真空中で熱処理し、絶縁破壊電界を測定した。熱処理条件は、加熱温度400℃および700℃、昇温5時間、保持1時間および自然冷却とした。また、熱処理用の真空容器と絶縁破壊試験用の真空容器は別個に設置され、熱処理後の電極は大気中を通して移送されている。

図9に熱処理電極の絶縁破壊試験結果を示す。これらの電極はいずれも熱処理後電解複合研磨が施され、スパッタ処理は行なわれていない。この結果を見ると、図8に示されたのと同様に、少ない絶縁破壊回数でコンディショニング効果が飽和していることがわかる。これは、電解複合研磨の効果と考えられる。

ここでも第一回目の絶縁破壊電界に注目すると、熱処理なしの場合17MV/m、400℃熱処理の場合40MV/m、

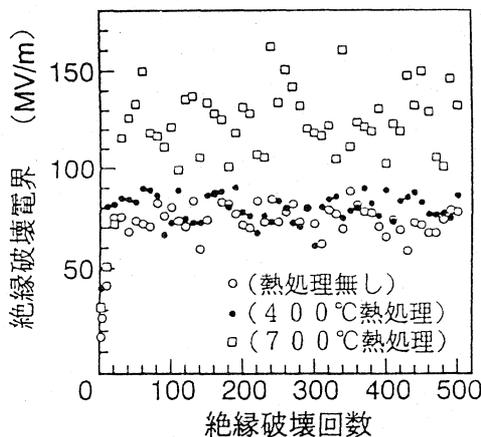


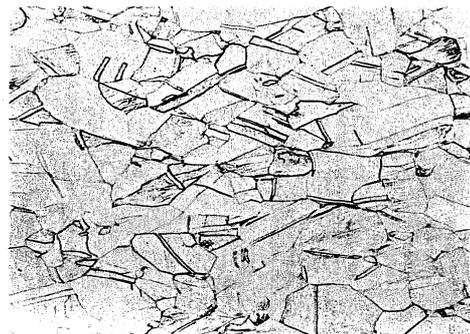
図9 熱処理電極の絶縁破壊特性

700℃の場合31MV/mとなり熱処理の効果が認められる。また、コンディショニング効果も熱処理により改善が図れることがわかる。<4・1>、<4・2>、<4・3>で述べた電極処理法では、第一回目の絶縁破壊電界強度の改善には効果が見られなかったが、熱処理ではその効果が認められたことが特徴的である。電極個体間のバラツキも考えられるが、熱処理以外の電極では、いずれも第一回目の破壊電界に大差ないので、熱処理による効果には有意性があるものと考えられる。

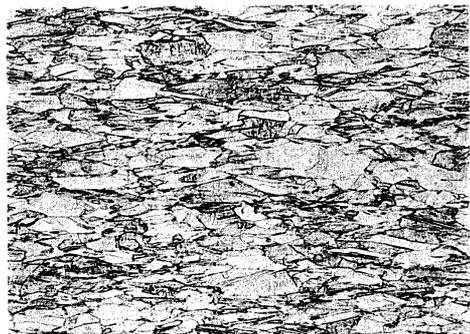
#### 5. 真空中の絶縁破壊に対する電極のバルク特性と表面の影響

##### < 5・1 > 電極吸蔵ガスとコンディショニング効果

以上示したように、電極表面のin situ電極表面処理および吸蔵ガス量を減少させるような処理を施すとコンディショニング効果に改善が見られる。各グレードの素材の結晶組織を調べたところ、図10に示される結果が得られ、Class1素材の方が結晶が大きく成長していることがわかる。図1に示した判別図と比較すると、結晶粒の大きさが良く対応しており、実際に吸蔵ガス量が規格通り制御された無酸素銅素材であることが確認された。また、無酸素銅の吸蔵ガス成分を二次イオン質量分析法(SIMS)により分析した結果[2]によれば、真空処理されたClass1の規格の銅は、水素および酸素の放出が少ないことが報告されている。この分析法は、イオン衝撃を受けた固体表面から放出されるガスの成分を分析しているため、真空ギャップの絶縁破壊が引き起こされるときに状況に近い。従って、イオン等の衝撃によるガス放出が少ない材料は、高い絶縁破壊耐力を得るために望ましい材料といえる。



(a) Class 1



(b) Class 3 0.4mm

図10 使用した無酸素銅の結晶構造

### < 5・2 > 電極表面の加工歪みと絶縁破壊電界

熱処理が施された電極では、第一回目の絶縁破壊電界に改善が見られた。この熱処理による結晶構造の相違を図11に示す。熱処理温度が高くなるにつれ結晶粒が大きく成長していることがわかる。従って、図1と比較対照すると、吸蔵ガス量が減少していることは考えられるが、それだけで第一回目の破壊電界の向上を説明することは困難である。

電極表面には、加工により機械的歪みが生ずる。この歪みは、いかに注意深く加工を行なっても必ず生ずるもので、そのため電極表面は結晶構造上極めて複雑なものとなっていることは疑いない。従って、電子放射特性、ガス吸着等表面状態に敏感な現象に大きな影

響を及ぼしている可能性が高い。この歪みは熱処理により緩和することができる。従って、熱処理は、吸蔵ガス量の減少だけでなく、機械加工により生じた歪みを緩和し、その結果、電子放射等の表面に敏感な現象の特性が、絶縁破壊にとって都合の良い方向に変化させたものと考えることができる。

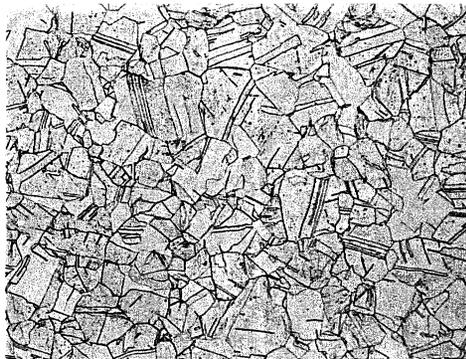
### 6. まとめ

本研究で得られた結果は以下のように要約できる。

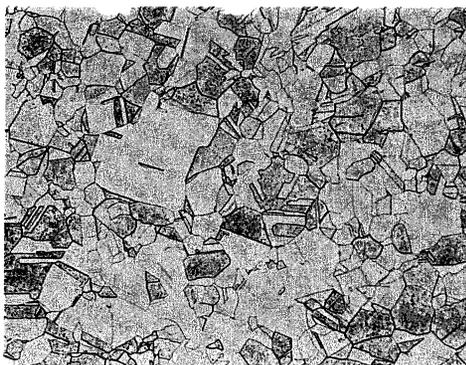
- (1) In situ 電極表面清浄化処理は、絶縁耐力の向上を図る上で、また、絶縁耐力に対する電極素材の影響を研究する上で必要な処理手法である。しかし、清浄化処理のみでは、第一回目の絶縁破壊耐力を改善するには不十分である。
- (2) 吸蔵ガス量が少ない電極は、良好なコンディショニング効果を有する。しかし、吸蔵ガス量が少ないだけでは、(1)と同じく第一回目の絶縁破壊電界の改善に直接的には寄与しない。
- (3) 本研究で用いた電極処理法のうち、熱処理が第一回目の絶縁破壊電界の改善に効果が認められた。この理由として、熱処理による加工歪みの緩和が一つの可能性として挙げられた。



(a) 熱処理なし



(b) 400 °C



(c) 700 °C

0.4mm

図11 熱処理後の電極結晶構造

### 参考文献

- [1] R.V.Latham, High Voltage Vacuum Insulation: The Physical Basis, p.40 (1981) Academic Press, London.
- [2] 永井・斉藤・松田・酒井・堀越, "真空処理無酸素銅の性質", 真空, 31, (1988), pp.562-565.
- [3] 染野 檀, 安盛岩雄, 表面分析, p.136 (1977) 講談社.
- [4] Y.Baba and K.Sato, "Super Mirror-Flat Finishing of Metal Surfaces by Electrochemical Buffing", Proc. 15th Intn'l Symp. on Discharges and Electrical Insulation in Vacuum, (1992), pp.3-10.
- [5] 塩入 哲, 松尾和宏, 村瀬 洋, 大川幹夫, 大島 巖, "真空中のステンレス電極の電極表面状態と絶縁性能", 平成4年電気学会全国大会 174 (平4-3).