

# インジウムを用いたガラス接着体中の応力

岸 井 貴

(東京芝浦電気株式会社)

## 3. Stress in Glass-Indium-Glass Bi-metallic Composites

By

Toru KISHII

(Tokyo Shibaura Electric Co., Kawasaki, Japan)

In electronic tube manufacturing industry, indium is used for cementing glass components to form vacuum-tight seals. Owing to its low melting point (156°C) and yield strength, indium can cement together glasses with different thermal expansion coefficients or can form seals at relatively low temperature.

To examine effects of plasticity of indium on formation, distribution or release of stresses in seals, bi-metallic composites were formed from strips (5×10×50 mm<sup>3</sup>) of various kinds of glasses (silica glass, Kovar sealing and commercial plate glasses) by cementing with indium, and the stress was observed photo-elastically. Results were as follows: 1) Stress was nearly zero at ends and reached maximum at central parts of the composite, 2) Cooling rate after cementing did not so much affected stress in the composite, 3) By soaking at temperatures near melting point of indium, stress decreased in some degree, 4) During temperature cycles, stress showed hysteresis phenomena distinctly, 5) Observed stress near room temperature was far smaller than that calculated by assuming adhesion at melting point of indium and 6) Stress in glass caused by sticking of indium was hardly recognized.

The results were explained by putting several assumptions on plastic behaviour of indium layer, namely; 1) As yield strength of indium is low, stress near free surface of indium layer in the composite cannot be intense, 2) Bending moment in the composite or expansion difference between glass strips held per unit area of indium layer are restricted by yield strength of indium, 3) Increase of stress over this limitation is prevented by plastic flow of indium, 4) The limit decreases with increase of temperature and decreases quickly to zero near the melting point of indium and 5) By soaking at constant temperature the limit decreases. Degree of lowering is slight at room temperature and is distinct at relatively high temperature.

From the experimental results and the consideration described above, it is concluded that stress in the composite is mainly determined by shape or dimension of the composite including indium layer, as well as by plastic properties of indium.

[Received June 16, 1965]

### I. 結 言

電子管工業において、インジウムがガラスの接着に用いられる。インジウムは低温度(156°C)で融け、ガラスを濡らし、常温でも軟らかくて塑性変形しやすい。そのため、膨脹係数差の大きいガラスの封着、耐熱的でない回路素子をつけているガラスの接着に都合がよい。光電導物質が形成されているビジコン前面ガラスの封着は、インジウム利用の1例である。

インジウムを用いた接着体は、接着材の塑性のために特殊な応力特性を示すと予想されたので、実験的に調べたことを試みた。

### II. 実験方法

図-1のように、3 mm×10 mm×50 mm のガラス片をインジウムで接着し、光弾性で、接着体内の応力分布、接着体を加熱した時の応力の変化などを測った。使用したガラスは、石英ガラス、コパール封着用ガラスおよび市販板ガラスであった。常温附近での膨脹係数は10<sup>-7</sup>/°Cを単位として、それぞれ7, 50, 約80であった。

光弾性装置は水晶くさびを用いたもので、視野内に黒い干渉縞が現われ、試料の応力によって縞が変位する方式のものであった。直接には、縞の変位から光弾性的レターディション(単位 mμ)が測定され、以下に図示された。ガラスの光弾性常数は、(mμ/cm)/(kg/cm<sup>2</sup>)を単位として、石英ガラス3.5、コパール封着用ガラス3.6、板ガラス2.6であり、これらを使ってレターディシ

ンから応力を算出できる。

接着体を加熱するには電気炉を使った。測定は常温に近い温度域で行なわれたから、加熱、冷却の速さを自由に調整することができ

なかった。それゆえ、温度変化の速さは比較的小さくし、ことにたとえば常温附近での冷却は非常に遅かった。IV.7 で述べるように、温度変化速度が応力に及ぼす最終的な影響は大きくないので、温度変化速度を調節できなかったことが、結論を大きく変えることはないと考えられた。

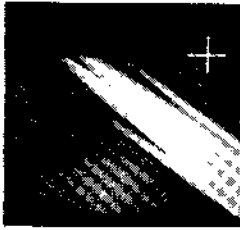


Fig. 2. Observation of a bi-metallic composite (silica glass-indium-plate glass) near its end between crossed nicols. Cross: directions of vibration of polarizer and analyzer

の角度を変えてもほとんど変わらず、明るさが全体にわたり一般的な割合で変わるだけであった。特に接着体を偏光の振動方向と平行に置くと、全体がほぼ完全に暗くなっ

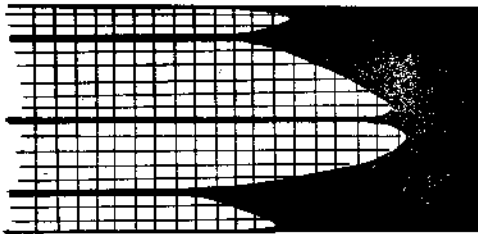


Fig. 3. Schematic representation of trajectories of principal stresses near end of bi-metallic composite. Stress is hardly detected in black areas.



Fig. 4. Photoelastic observation of stress distribution in bi-metallic composite, by using quartz wedge. The direction from left to right in the photograph corresponds to the one from end to central part in the composite.

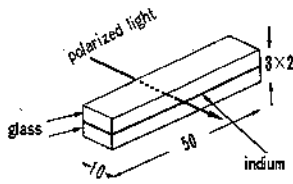


Fig. 1. Sample used for photoelastic stress measurement. (unit: mm)

### III. 実験結果

#### III.1 接着体内の応力分布

直交ニコルの間に、(石英ガラス-板ガラス) 接着体の端部を入れて観察した。接着体が偏光の振動方向と45°の角度をなす場合を 図-2 に示す。この明暗の分布は、試料

た。それゆえ、主応力線は、ガラス面と平行および直角な方向へだけ伸びていると認められた (図-3)。

主応力の方向分布は単純であるが、応力の値は場所により変化していた (図-4~6)。すなわち、両端部では0で、中央部が最大であった。接着後の冷却速度が応力に

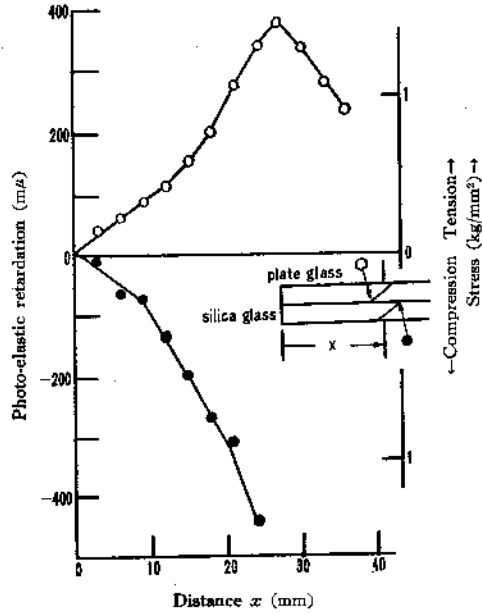


Fig. 5. Stress distribution in a bi-metallic silica glass-indium-plate glass composite

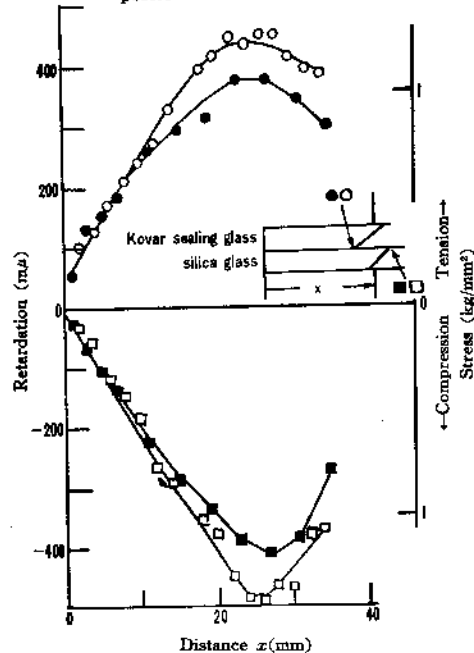


Fig. 6. Stress distribution in a bi-metallic silica glass-indium-Kovar sealing glass composite. Filled circles and tetragons: cooled in air after cementing. Open circles and tetragons: cooled slowly in electric furnace after cementing.

及ぼす影響は、比較的小さかった(図-6).

III.2 外部応力を加えた場合の応力分布の変化

(石英ガラス-コパール封着用ガラス) 接着体に曲げ歪みを加えると、応力分布が変化した(図-7). パイメタル作用による接着体の曲がりに対して、これを助長するように曲げ歪みを加えた後の変化は小さかった. その逆方向の曲げ歪みを加えると、変化が顕著で、応力の符号

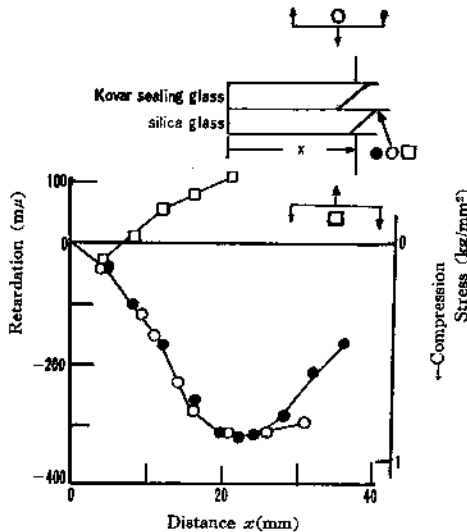


Fig. 7. Change of stress distribution in a composite by application of external bending stresses.

Filled circles: before applying bending stress. Open circles and tetragons: after application of bending stress.

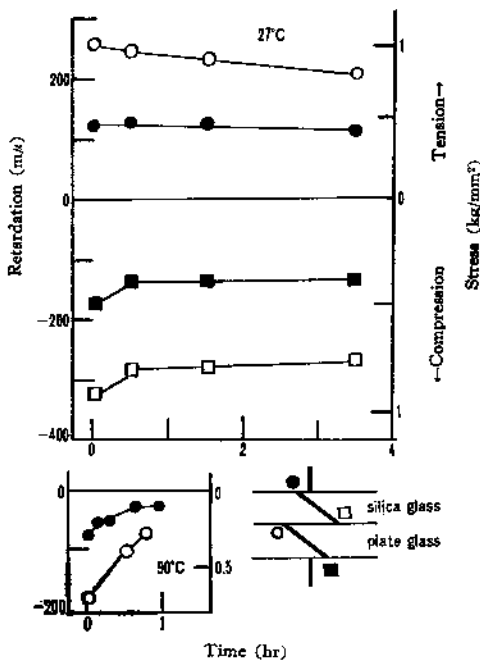


Fig. 8. Change of stress during soaking at constant temperatures.

を逆転させることも可能であった.

III.3 応力の時間的変化

(石英ガラス-板ガラス) 接着体を、27°C および 90°C に保持した時、応力は 図-8 のように変化した. 90°C では、応力が明らかに減少した.

III.4 インジウムの付着による応力

板ガラス片の面に、インジウムを厚さ約 0.5 mm に盛上げ、応力を測った. 応力は認められたが、その値は非常に小さく、また加熱しても増加しなかった(図-9).

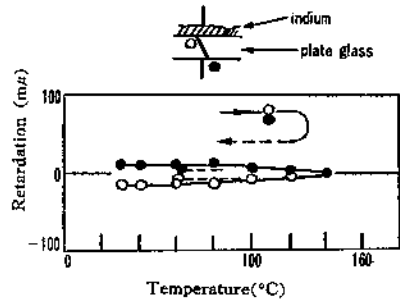


Fig. 9. Stress in glass carrying thick layer of indium and its change with temperature.

III.5 温度変化にともなう応力の変化

(石英ガラス-板ガラス) 接着体の中央部の応力は、温度変化にともない 図-10 のように変った. これに対応する光弾性写真を 図-11 に示した.

同じ接着体の、応力が中央部よりも小さい部分について、いろいろの温度サイクルを与えて測ると、図-12 の

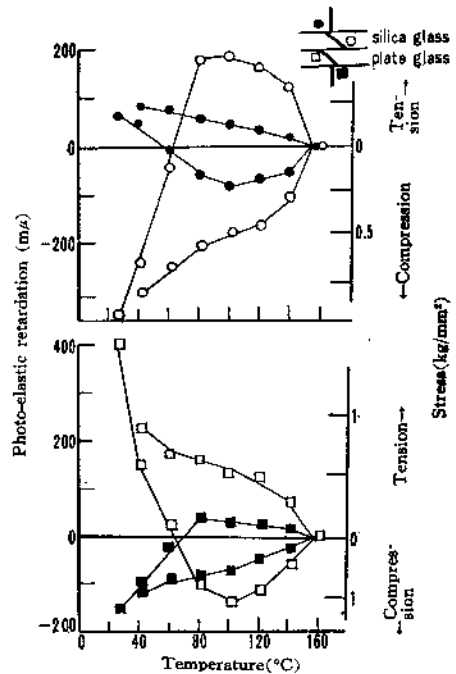


Fig. 10. Change of stress in a silica glass-indium-plate glass composite with temperature.

ようになった。

(石英ガラス-コパール封着用ガラス) 接着体で、その中央部 (図-13) と、端へ寄った部分 (図-14) の応力を測った。温度サイクルを与えた時の応力変化は、これら2つの場合定性的にはほぼ同じであった。応力の絶対値

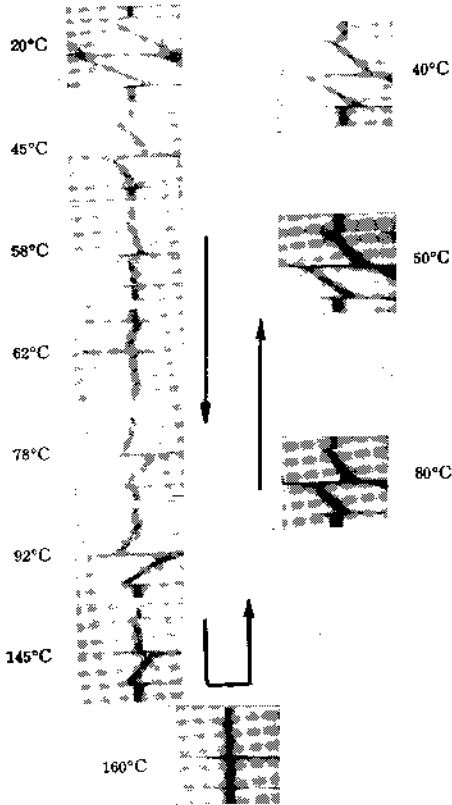


Fig. 11. Photo-elastic observation of stress in a silica glass-indium-plate glass composite during heating and successive cooling.

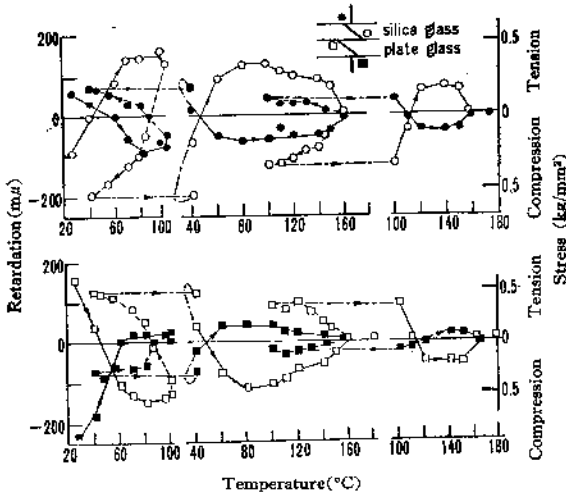


Fig. 12. Change of stress in a silica glass-indium-plate glass composite during temperature cycles.

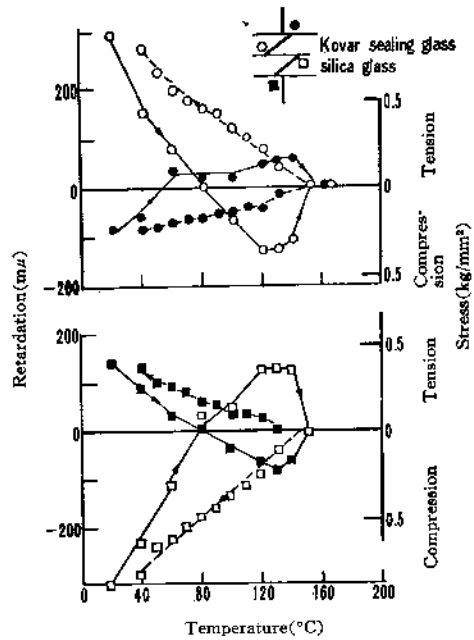


Fig. 13. Change of stress in a silica glass-indium-Kovar sealing glass composite with temperature (I). At the central part.

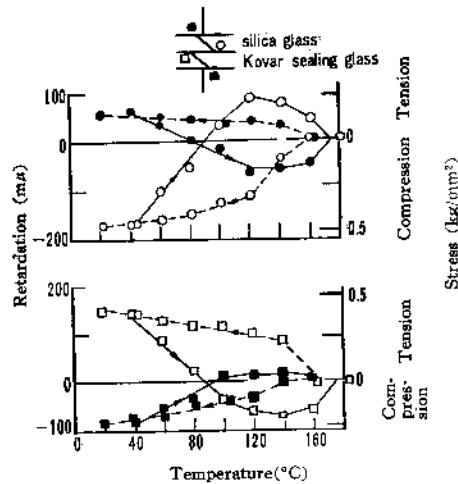


Fig. 14. Change of stress in a silica glass-indium-Kovar sealing glass composite with temperature (II). At the part with relatively low stress.

は、中央部の方が大きかった。

(板ガラス-コパール封着用ガラス) 接着体に温度サイクルを加えた場合の結果を 図-15 に示す。途中で定温度保持をして、インジウムの塑性的な影響を調べたものである。定温度保持の間に応力は緩和するが、つぎに温度変化を始めると応力が急激に変わり、定温度保持前の値の外挿値に相当する値になり、定温度保持の効果は見出されなくなってしまう。

#### IV. 考 察

##### IV.1 インジウムの塑性による応力緩和

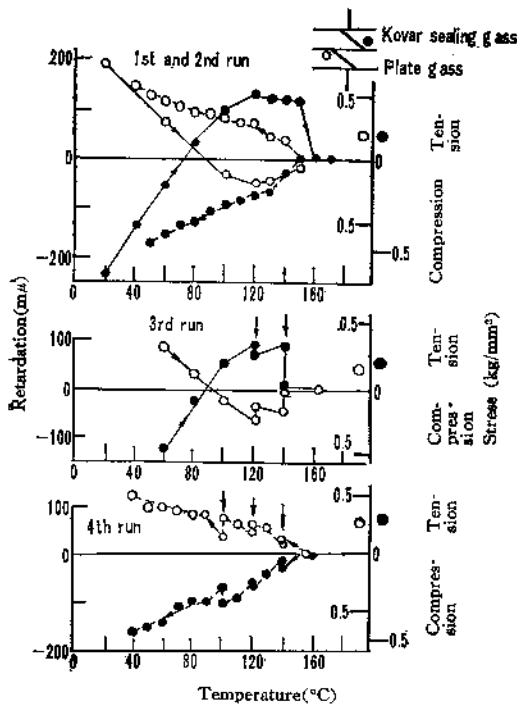


Fig. 15. Change of stress in a plate glass-indium-Kovar sealing glass composite during temperature cycles ↓: soaking at constant temperature for 30 minutes.

もしも膨脹係数の異なる2枚のガラス片が固く接着され、弾性的にパイメタル作用で変形すると考える<sup>2)3)</sup>。両者のヤング率  $E$ 、厚さ  $a$  が等しいならば、接着面に生ずる最大応力は、 $E \times \delta$  ( $\delta$  は膨脹差) の  $1/2^4)$  ないし  $4/7^5)$  倍と予期される。 $E$  は  $700000 \text{ kg/cm}^2$  程度であり、膨脹係数  $\alpha$  の差  $\Delta\alpha$  は  $4 \sim 8 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$  である。従ってインジウムの融点と常温との間での  $\delta$  は  $6.5 \sim 13 \times 10^{-4}$  で、最大応力は  $270 \sim 540 \text{ kg/cm}^2$  と算出される。また温度変化  $1^\circ\text{C}$  当りの最大応力の変化量は、 $2.8 \sim 5.6 \text{ kg/cm}^2$  である。

実測結果(図-5)では、応力は端部で0に近く、中央部でも  $150 \text{ kg/cm}^2$  を超えない。これは計算値よりかなり小さい。この差の原因はインジウム層が応力緩和に関与するからであろう。

インジウム層が応力を緩和させる機構として、次のようなものが考えられる：

- (i) 2枚のガラス片の間でのすべりを起させる。
- (ii) インジウム層がガラス片とともに弾性変形をし、インジウム層がない場合に比べて、発生する応力を減らす。
- (iii) インジウム層は、ガラスとの膨脹係数の差のため、温度変化がある時は常に塑性流動をしている。この流動は、恐らく接着体内の応力を小さくする方向に作用するであろう。

つぎに、温度変化にともなう応力変化の割合を調べる。これは接着体の中央部について測り、かつ常温から加熱していくか、または高温から冷却されたものが加熱に転ずる場合の、狭い温度上昇の期間内のものだけは、前記の計算値に近い(図-10, 13)。しかしそれ以外の場合にははすべて、計算値よりはるかに小さい。この原因も、インジウム層の塑性的な挙動であろう。

#### IV.2 インジウムの挙動

IIIにおける実験結果、またはIV.1の考察の結論などを説明するために、インジウムが次のような塑性的な挙動をすると仮定してみたい。

(1) インジウムの自由表面での応力は、實際上無視できるくらい小さい。

(2) インジウム層が、その単位幅および単位長さなりに支えうる、ガラス間の膨脹差あるいはガラス内の曲げ応力には限界がある。

(3) この限界以上の膨脹差や応力が生じようとするとき、インジウムは塑性流動をしてガラス片間にすべりを起こさせ、応力の増加を防ぐ。

(4) この限界値は温度上昇とともに減少し、インジウムの融点近くで急減し、0に近づく。

(5) 接着体を一定温度に長く保持することにより、この限界値を低下させうる。低下の程度は、常温では僅かだが、インジウムの融点付近ではかなり著しい。

つぎに、インジウム層は有限の厚さを持つから、この弾性変形も接着体の応力を小さくするのに役立つ。それ故、次のように仮定する。

(6) インジウム層が弾性変形をするならば、接着体全体の変形や応力変化も弾性的である。特にインジウム層が十分薄ければ、接着体は近似的にはパイメタルの理論に従った変形をする。

ただし、次の考察によって、インジウム層全体が弾性的であるのは、かなり限られた温度変化域内だけであると推測される：

応力のない接着体があったと仮定する。これに温度変化を与えると、2枚のガラス片間に膨脹差ができ、応力が発生する。もしすべての材料が弾性変形をするならば、大きい応力が端部に集中する<sup>6)</sup>。それ故仮定(2)、(3)によって、この部分のインジウムが塑性変形を始める。温度変化が大きくなるにつれて、塑性変形を起している領域が中央部へ広がっていくと考えられる。このために、インジウム層を含めた接着体が厳密に弾性的変形をする温度範囲は、非常に狭いものと予想される。

以上の推定、仮定は一応妥当なものと思われるが、厳密には弾性論や塑性論によって裏付けられることが望ましく、これは将来の問題としたい。これらによって、実験結果の検討と説明を試みる。

#### IV.3 インジウムの自由表面の影響

インジウムの塑性降伏強度を  $P_0$  とし、層内の3個の主応力を  $P_1, P_2, P_3$  とすれば、降伏の条件式は

$$(P_1 - P_2)^2 + (P_2 - P_3)^2 + (P_3 - P_1)^2 = 2P_0^2$$

となる。インジウムは軟らかいので、 $P_0$  は小さい。インジウム層のへりは自由表面になっており、表面に垂直な応力は0である。従って降伏の条件式から、他の方向の応力は  $P_0$  を超えられず、インジウムがガラスに及ぼし、またはガラス内に引き起す応力も小さい。バイメタル形接着体の端部で応力が小さいのは、このように説明される。インジウムを盛り上げただけのガラスでは、インジウムの表面が広くて、応力が大きくなりえないはずである (図-9)。

IV.4 インジウム層および接着体中の応力分布

インジウム層は、その短辺だけでなく、長辺に沿って自由表面がある。従って、その層内に発生しうる応力の最大値には、層の幅 (短辺の長さ)、厚さおよび  $P$  から決まる限度がある。これは、層の長辺に沿う単位長さ当りに支えうる、接着体の曲げ応力あるいはガラス間の膨脹差に限度があることを意味し、仮定 (2) に対応する。接着体中の応力は、この限界値を長さに沿って積分したものに近く、しかも両端付近では0であるという境界条件を置かれたものになる。その結果として、接着体の応力分布は 図-5, 6 のように、中央部に極大がある形になると考えられる。

もしも接着体が長ければ、中央部の極大応力値も大きくなると予想される。しかしいくら長くても、インジウムなしでガラスが直接に接着された場合の値を超えることはないであろう。

IV.5 冷却時のインジウムの挙動

インジウムを融解して、膨脹係数の異なるガラスを接着した場合を考える。冷却されてインジウムの融点 (図-16 M) に達すると、インジウムが固化し接着体に

応力が発生する。インジウム層が薄く、かつ弾性的に変形するならば、応力はバイメタルの理論から計算される値 (MA) に等しい。しかし実際には、M 点附近ではインジウムの塑性変形が顕著であり、匍匐もあって応力の一部を緩和するので、応力はMAよりも小さく、MB に沿い変化する。

CDは、インジウムの塑性降伏強度から決まる応力の値で、恐らく低温度では高いと思われる。応力がCD線に達すると、インジウムは塑性によって応力を緩和し、それ以上の応力発生を防ぐ。それ故、応力はCD線に沿って行く。

IV.6 加熱時の応力変化

冷却されてE点に相当する温度、応力を示す接着体を、加熱した場合を考える。加熱すればガラス間に発生した膨脹差は減じ、応力は小さくなる。インジウム層中の応力も降伏限界より低下するので、その挙動は弾性的である。従って接着体は弾性的に変形し、応力はMAに平行なEF線に沿って変わる。

しかしながら、弾性的に変形する場合、接着体の端部にまず大きい応力が発生し、インジウムが塑性変形を始める。この点がFに相当する。塑性変形をする領域は順次中央部まで広がり、応力はEFの延長から離れる。応力の絶対値は0を経て逆符号に変わる。その絶対値が大きくなり、CDとは逆符号のGH線とI点で交わる時は、インジウム層は全体で塑性変形を起しており、以後の応力はIHに沿って変化する。さらに融点Mに近づくと、インジウムの匍匐が顕著になり応力が下る。M点では応力は0になってしまう。これらの経過は、図-10, 12~15 によく表わされている。

IV.7 温度サイクル下の応力の変化

温度サイクルを与えられた時の接着体の応力変化は、前記の場合にならって考えればよい。たとえばJ点まで加熱されてから冷却に移れば、JKLの経路をとるであろう。この経過は 図-12 などに表示されている。

IV.8 インジウムの匍匐の効果

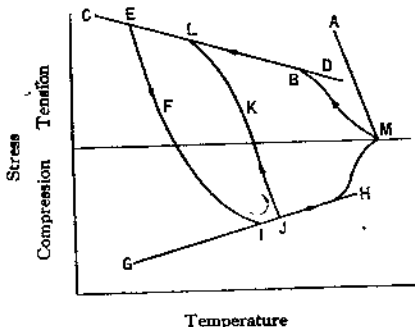


Fig. 16. Schematic explanation of temperature-stress characteristics of bi-metallic composite M: melting point of indium MA, EF: change of stress following the theory of bi-metals, CD, GH: limits of stress determined by yield strength of indium, F, K: the points where indium begins to flow.

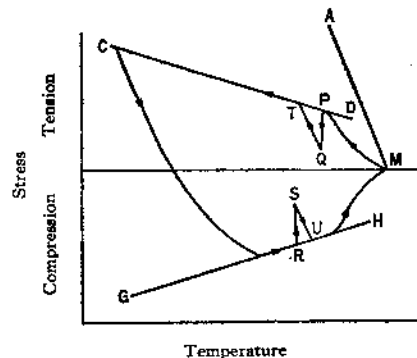


Fig. 17. Schematic explanation of effects of soaking at constant temperatures and of creep of indium.

インジウムの融点に近い温度に長く保持すると、応力の絶対値はいくらか減少する(図-17 PQ,RS)。つぎに温度変化を与えると、インジウム層は匍匐のため応力が小さくなっているから、弾性的に変形する。応力は Q,S などから MA に平行に変わるが、間もなく CD, GH 線と交わり、それ以後の変化は前記の場合と同様になる。定温度保持は、応力変化の有様に大きい影響を及ぼさない。

#### IV.9 応力に影響する他の要因

今までの説明からわかるように、接着体の応力に本質的に影響するのはインジウム層の挙動であり、ついで層の厚さを含めた接着体の形状である。それゆえ、インジウムを用いれば常に異種ガラスを接着できるとは限らない。また、インジウム層の厚さも、ある程度応力に影響すると予想される。

#### V. 総 括

膨脹係数の異なるガラス片をインジウムで接着したバ

イメタル形の試料の応力分布と、温度変化にともなう応力の変化とを、光弾性で観察した。接着体内の応力は端部で0に近く、中央部で最大であった。応力の大きさを決める主要因は、ガラス間の膨脹係数差でなく、むしろインジウム層の塑性降伏強度と、インジウム層の厚さを含めた接着体の形とである。インジウムが塑性変形するので、温度変化にともなう応力の変化には顕著な履歴現象があった。高温では、インジウムの塑性匍匐による応力の緩和があるが、これは最終的な応力の値にはほとんど影響しない。応力の履歴現象は複雑であったが、インジウム層の挙動に関していくつかの仮定を設け、統一的に説明することができた。

#### 文 献

- 1) S. Timoshenko, *J. Opt. Soc. Amer.*, 11, 233 (1925).
- 2) 不二門章, 東芝レビュー, 16, 1577 (1961).
- 3) B.A. Boley, J.H. Weiner, "Theory of Thermal Stresses" p. 429

(6/16/1965 受付)