

**Zeitschrift:** Helvetica Physica Acta  
**Band:** 60 (1987)  
**Heft:** 7

**Artikel:** Etude des joints de grains dans la glace I<sub>h</sub> par spectrométrie mécanique  
**Autor:** Tatibouet, J. / Perez, J. / Gobin, P.-F.  
**DOI:** <https://doi.org/10.5169/seals-115876>

### **Nutzungsbedingungen**

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. [Siehe Rechtliche Hinweise.](#)

### **Conditions d'utilisation**

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. [Voir Informations légales.](#)

### **Terms of use**

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. [See Legal notice.](#)

**Download PDF:** 16.03.2025

**ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, <https://www.e-periodica.ch>**

# Etude des joints de grains dans la glace $I_h$ par spectrométrie mécanique

Par J. Tatibouet, J. Perez et P-F. Gobin

Gemppm, INSA Lyon, U.A. CNRS 341  
69621 Villeurbanne France

Dédié au Prof. B. Vittoz pour son 60ème anniversaire

(16. VII. 1987)

*Résumé.* Des expériences de spectrométrie mécanique (frottement interne très basse fréquence) sont menées sur des bicristaux et des polycristaux de glace et mettent en évidence un pic de relaxation associé à la présence des joints de grains. Un modèle semi-quantitatif permet de décrire le phénomène et d'explicitier les valeurs élevées d'énergie d'activation mesurées expérimentalement.

## Introduction

La compréhension des phénomènes physiques qui interviennent lors de la déformation plastique de la glace polycristalline à haute température est de première importance et de nombreuses études en témoignent (1, 2, 3). Ces études montrent que pour des températures supérieures à 250 K la situation est très complexe et font ressortir la nécessité de mieux connaître les propriétés dynamiques des joints de grains.

Les mesures de frottement interne sur la glace polycristalline à haute température sont un outil intéressant pour étudier les propriétés des joints de grains. Ainsi Kuroiwa (4) travaillant dans le domaine de fréquences voisines du kHz a interprété la montée de frottement interne vers le point de fusion comme la conséquence du glissement aux joints de grains, la fréquence trop élevée de ses expériences ne lui permettant pas de mettre en évidence un pic de relaxation. Cet auteur, utilisant l'hypothèse de Kê (5) décrivait le phénomène en termes d'écoulement visqueux aux joints de grains et ne montrait pas de dépendance avec la structure de ceux-ci.

L'utilisation de faibles fréquences ( $\sim 1$  Hz) a permis à Perez et al. (6) d'étudier de façon plus complète le phénomène. Dans ce cas, les mesures de frottement interne présentent un pic de relaxation situé à haute température associé aux mouvements des joints de grains sous l'action de la contrainte cyclique.

En utilisant une technique de mesure de frottement interne très basse fréquence ( $1-10^{-3}$  Hz), véritable spectrométrie mécanique, nous avons pu étudier

ce pic de relaxation dans un domaine de températures plus basses. Ceci conduit à une bonne séparation entre ce pic et la montée de frottement interne haute température analysée en termes de mouvements de dislocations dans le cas des monocristaux (7, 8). Les conditions d'observation de ce pic de relaxation sur différents types d'échantillons ont ainsi pu être discutées et conduisent à proposer un modèle semi-quantitatif basé sur le mouvement des dislocations de joints de grains.

## Technique expérimentale

Les mesures de frottement interne très basses fréquences ont été effectuées à l'aide d'une micromachine de torsion développée au laboratoire (9). Les fréquences d'application de la contrainte ou de la déformation sont comprises entre 1 et  $10^{-3}$  Hz (TBF) et les mesures sont effectuées dans des conditions isothermes entre 200 et 273 K. L'amplitude de mesure est constante et égale à  $\varepsilon_{\max} = 2 \cdot 10^{-5}$ . La déformation plastique des échantillons est possible in situ par fluage en torsion jusqu'à 3% de déformation.

Les échantillons (bicristaux et polycristaux) nous ont été fournis par le Laboratoire de Glaciologie CNRS de Grenoble. Dans le cas de bicristaux, l'orientation de chaque grain est précisée par indexation de diagramme de Laue en transmission.

## Resultats

### (a) *Bicristaux*

La mesure du frottement interne sur un bicristal met clairement en évidence le pic de relaxation haute température. La température de ce pic varie avec la fréquence de mesure et dans le cas d'un échantillon de glace pure non déformée plastiquement, le pic est bien séparé de la montée de frottement interne associée aux mouvements des dislocations comme le montre la Fig. 1. Dans ce cas le plan du joint de grains est parallèle à l'axe de torsion et les axes  $\vec{C}$  perpendiculaires à celui-ci.

Le même échantillon a été ensuite déformé plastiquement par torsion à 265 K jusqu'à 1% de déformation. Le spectre de frottement interne est alors considérablement modifié comme le montre la Fig. 2. On note une augmentation de la montée de frottement interne haute température. Ce phénomène observé sur les monocristaux est clairement attribué à l'augmentation de la densité de dislocations intragranulaires. L'autre importante modification du spectre est la quasi-disparition du pic de relaxation comme cela ressort nettement pour les fréquences de 1 et  $10^{-1}$  Hz.

Lors de maintien à 270 K, le spectre évolue de nouveau. La partie haute température décroît nettement, tandis que l'on note la réapparition du pic de relaxation, particulièrement nette pour 1 et  $10^{-1}$  Hz. Ces effets importants du

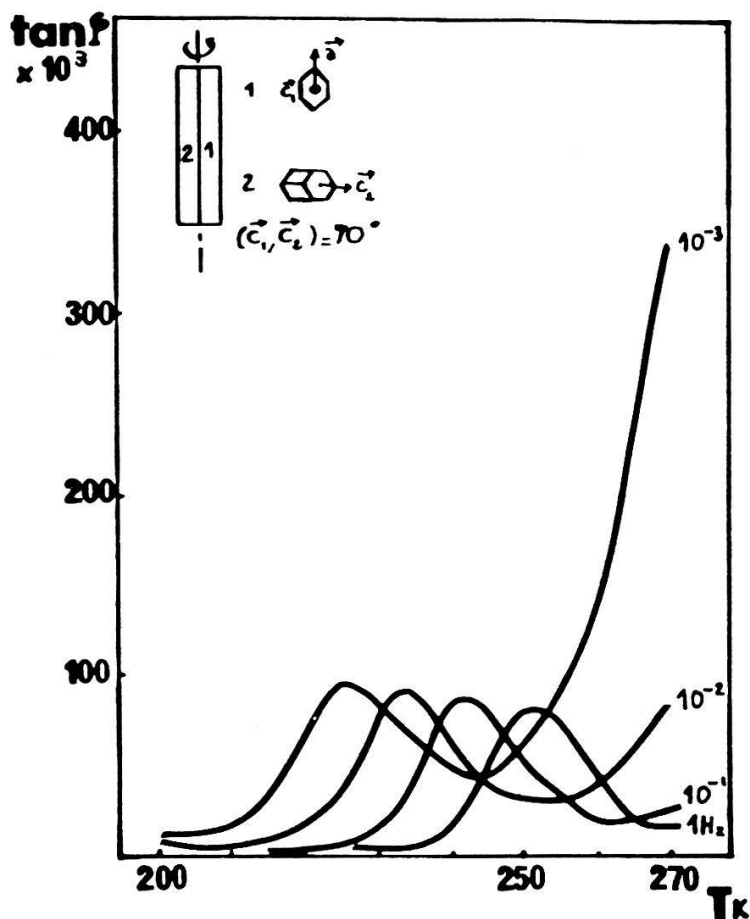


Figure 1  
Frottement Interne – Bicristal Glace Pure.

recuit sont dans ce cas notablement différents de ceux observés sur monocristal déformé comme l'indique la Fig. 3 et apparaissent donc bien représentatifs du comportement de la glace polycristalline.

### (b) Polycristaux isotropes

Les résultats obtenus sur de la glace isotrope à petits grains ( $\bar{d}^2 = 1 \text{ mm}^2$ ) sont représentés sur la Fig. 4. On note un étalement du pic en température, les intensités de relaxation restant du même ordre que dans le cas du bicristal. Les températures de pic sont inchangées.

Cette même figure présente également le cas d'un échantillon polycristallin isotrope dopé à l'acide fluorhydrique. Dans ce cas, le pic est déplacé vers les hautes températures.

### Caractéristiques du pic de relaxation haute température

Comme cela avait été déjà noté par Kuroiwa (4) et par Perez et al. (6) le phénomène de relaxation haute température n'est pas observé sur les monocristaux. Nous avons vérifié ce fait et même sur des monocristaux polygonisés aucun

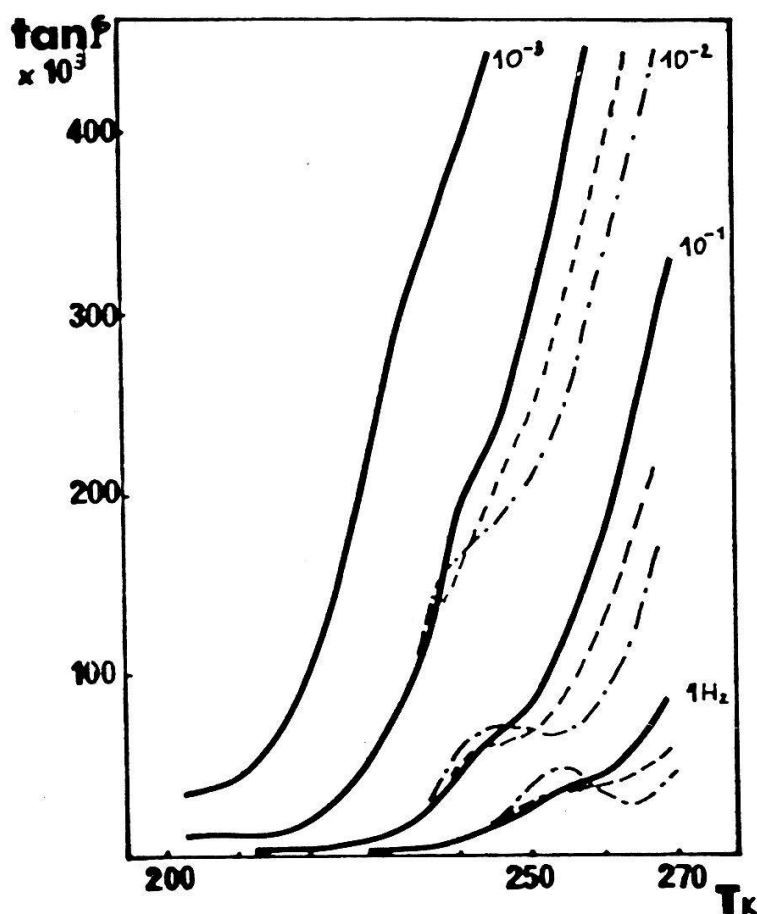


Figure 2

Influence de la déformation plastique et des traitements de recuit  
(même bicristal que sur Fig. 1)

- déformé plastiquement
- recuit 270 K 48 heures
- · - recuit 270 K 168 heures.

pic n'a été observé. Par opposition au cas de certains métaux comme l'aluminium, le cuivre ou le nickel où un pic de relaxation similaire peut être observé sur des monocristaux (10, 11), le pic de relaxation haute température dans la glace semble vraiment être associé uniquement aux propriétés des joints de grains.

En outre les résultats de Vassoille (12) montrent que le pic de relaxation est absent lorsque le joint est obtenu par soudage. Le phénomène de relaxation ne peut donc se produire que lorsque le joint de grains est à l'équilibre dans un état de plus basse énergie. L'effet de la déformation plastique vient confirmer ce résultat. Le traitement de recuit près du point de fusion conduit à une restructuration ou une reconstruction du joint plutôt qu'à une restauration au sens habituel du terme. Au cours du traitement, la diminution de densité de dislocations qui donne lieu à la montée de frottement interne se fait avec une cinétique notablement différente du cas des monocristaux déformés indiquant par là des interactions entre dislocations d'origine et de nature différentes.

Une autre caractéristique du pic de relaxation concerne la dépendance de

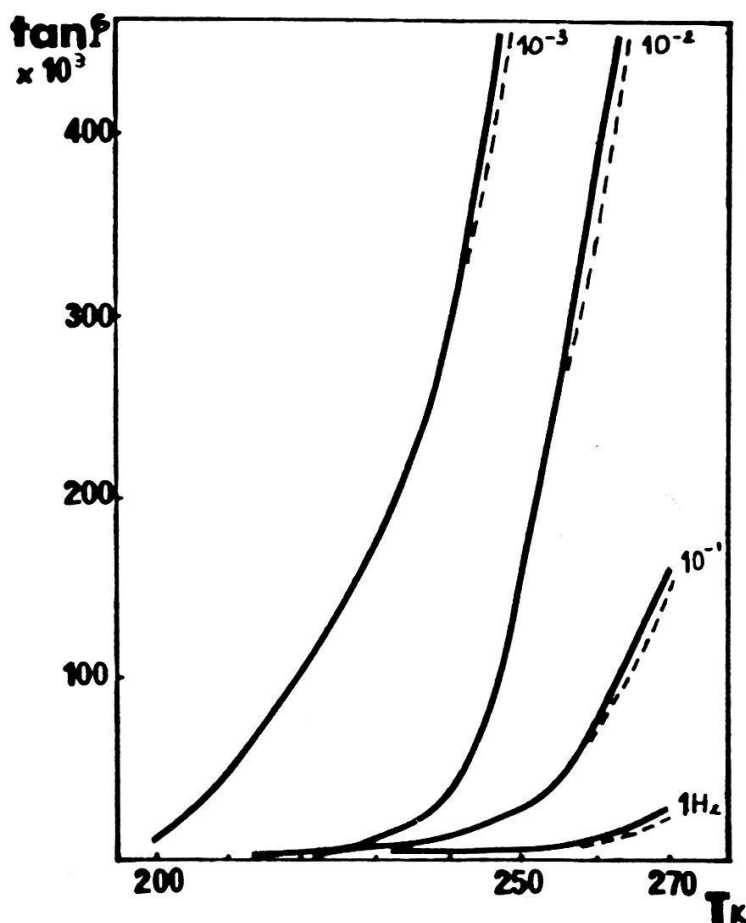


Figure 3  
Frottement interne – Monocrystal déformé plastiquement  
-- recuit 268 K 150 heures.

l'intensité de relaxation avec la surface des joints. Il n'existe pas de relation simple entre surface totale de joint et intensité de relaxation comme cela avait déjà été suggéré précédemment (6). Toutes nos expériences conduites sur bicristaux et polycristaux montrent que l'intensité de relaxation dépend plutôt des propriétés induites par la géométrie des cristaux et des joints, en d'autres termes de la structure du joint.

D'autre part, l'utilisation de la technique TBF nous a permis d'étudier le pic dans un large domaine de température et ainsi de déterminer l'énergie d'activation apparente du phénomène. La Fig. 5 montre un diagramme d'Arrhénius du temps de relaxation associé au pic en faisant l'hypothèse d'un temps de relaxation unique ( $\omega\tau = 1$ ). Contrairement à ce qui avait été avancé ultérieurement par Kuroïwa (4) et Vassoille (12) l'énergie d'activation apparente est constante sur un grand domaine de température (225–260 K). A la fois sur les bicristaux et sur les polycristaux cette énergie peut être calculée et varie entre 1.26 et 1.38 eV.

Les énergies d'activation ont une valeur élevée et qui d'aucune façon ne peut être comparée avec les énergies d'activation trouvées dans la glace concernant des mécanismes élémentaires que ce soit l'auto-diffusion (0.6 eV), les mouvements de défauts rotationnels simples ou même le glissement des dislocations basales.

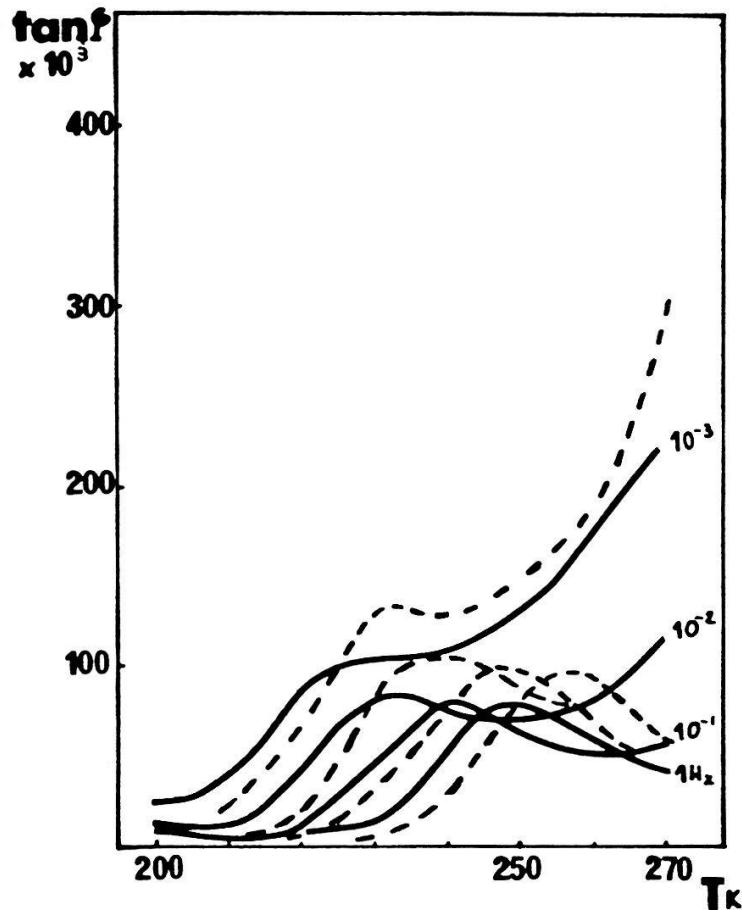


Figure 4  
Frottement interne – Polycristaux isotropes ( $\bar{d}^2 = 1 \text{ mm}^2$ )  
— glace pure  
--- glace dopée HF (5 ppm).

Le facteur préexponentiel apparent est inhabituellement faible (entre  $6 \cdot 10^{-27}$  et  $10^{-28} \text{ s}$ ) et ne peut rendre compte d'un mécanisme élémentaire au sens classique.

## Discussion

Bien qu'elle revête une importance fondamentale quant à la description des propriétés mécaniques de la glace polycristalline, la structure des joints de grains dans la glace est très mal connue. Comparée au domaine des métaux, l'étude des joints de grains dans la glace reste encore un domaine difficile.

Pour les joints à faibles désorientations, le modèle classique de parois de dislocations peut être appliqué et les expériences de mesures de vitesse des sous-joints (13) sous différentes conditions de température et de contrainte conduisent à des résultats s'apparentant au mouvement de dislocations isolées. En particulier les valeurs d'énergie d'activation mesurées ( $0.51 < E < 0.72 \text{ eV}$ ) peuvent être décrites en envisageant que les joints à faible désorientation sont constitués par des parois de dislocations.

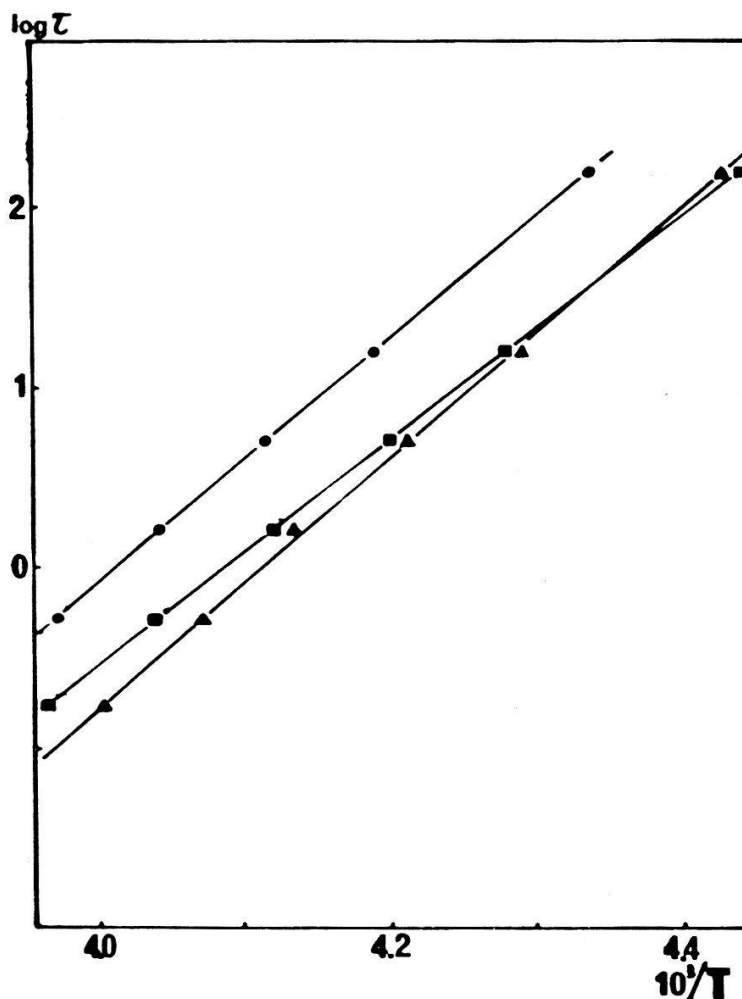


Figure 5  
Temps de relaxation en fonction de  $1/T$   
● isotrope dopé HF  
▲ isotrope glace pure  
■ bicristal glace pure.

Pour les joints à plus forte désorientation la situation est beaucoup plus complexe. En particulier pour les hautes températures, c'est à dire pour les températures supérieures à 263 K, les énergies d'activation mesurées lors d'expériences de fluage augmentent notablement dans ce domaine de température (2, 3, 14), indiquant des mécanismes de déformation complexes en particulier le glissement au joint de grains. L'existence d'une zone visqueuse quasi-liquide mise en avant par Kuroiwa (4) pour expliquer ses observations à partir de l'hypothèse de Kê (5) ne peut être retenue car dans ce cas aucune anisotropie ne devrait être observée. Au contraire, les observations de Hondoh et Higashi (15) et celles plus récentes de Ignat et Frost (16) montrent au contraire une forte anisotropie de migration du joint en fonction de l'orientation du joint.

Nos expériences de frottement interne montrent que l'orientation de la contrainte par rapport au joint de grains joue également un rôle important. Il y a donc tout lieu de penser que les mécanismes de glissement des joints de grains ou de relaxation des joints de grains dans le cas du frottement interne doivent être appréhendés, non pas en termes de zones de "mauvaise matière", mais plutôt par des mouvements de dislocations à l'intérieur et au voisinage du joint.



Compte tenu de ce qui précède nous pouvons donc raisonnablement développer une interprétation de nos résultats sur les bases suivantes:

(a) Le joint de grains est la somme d'un joint de coïncidence et d'un ensemble de dislocations intrinsèques arrangées permettant une désorientation par rapport au réseau de coïncidence. La densité de ces dislocations sera d'autant plus grande que l'on s'écarte de la position de coïncidence. L'ensemble de ce réseau pourra se comporter en fait comme un sous-joint à plusieurs degrés de liberté.

(b) Sous l'action d'une contrainte faible, il y aura possibilité de mouvement des dislocations constituant ce sous-joint complexe. Etant donné l'arrangement en réseau, les dislocations bien disposées pour le glissement vont prendre une certaine courbure, leurs extrémités étant en quelque sorte piégées par les intersections du réseau. Si la contrainte est périodique (cas de la mesure de frottement interne) la dissipation d'énergie par ces dislocations intrinsèques conduit à présence d'un pic de relaxation.

(c) Si une contrainte statique plus importante est appliquée, comme lors de la déformation plastique, le réseau de dislocations intrinsèques va se comporter comme un sous-joint à plusieurs degrés de liberté. En particulier, si l'on envisage un système simplifié ne présentant que deux degrés de liberté, le sous-joint va se décomposer conduisant à une structure hors équilibre (17) c'est-à-dire à une séparation sous forme de deux familles de dislocations qui donneront alors une manifestation anélastique analogue à celle observée dans le cas des monocristaux (montée monotone du frottement interne). Un recuit haute température conduit à une recombinaison des deux familles donnant ainsi naissance à un nouvel état d'équilibre du joint et à un nouveau pic de relaxation. La cinétique de recombinaison, plus rapide que le phénomène de recuit des monocristaux déformés indique une stabilité plus faible des produits de décomposition.

Pour une approche plus quantitative du pic de relaxation haute température nous pouvons décrire le déplacement des dislocations intrinsèques sous l'action de la contrainte appliquée en écrivant l'équation générale:

$$\dot{U} = f/B = (b\sigma - KU)/B$$

où  $U$  est le déplacement,  $f$  la force effective et  $B$  l'inverse de la mobilité c'est à dire en introduisant la vitesse  $v_d$  des dislocations

$$B = \sigma b / v_d$$

D'un point de vue physique il faudra répondre à deux questions:

- quelle est la nature de la force de rappel?
- le temps de relaxation observé traduit-il une durée moyenne de processus élémentaires indépendants?

i) *Force de rappel*

La force de rappel dans le cas des dislocations intrinsèques peut être, soit

classiquement la tension de ligne, soit l'augmentation d'énergie liée à la séparation des familles de dislocations considérées comme des sous-joints.

Dans le dernier cas l'intensité de relaxation est telle que:

$$\Delta\varepsilon/\varepsilon_{\text{elast}} = Ab/(\sigma/G) = S \cdot x \cdot b/(D \cdot \sigma/G)$$

où  $S$  est l'aire du joint par unité de volume,  $x$  la distance des dislocations par rapport au plan du joint de départ et  $D$  la distance séparant deux dislocations d'une même famille. Dans le cas de nos expériences sur bicristal ceci conduit à  $\Delta\varepsilon/\varepsilon_{\text{elast}} \approx 10^{-3}$  soit deux ordres de grandeurs inférieurs aux résultats expérimentaux.

En retenant la première hypothèse de la tension de ligne on peut écrire:  $\Delta = \Lambda \bar{l}^2/6$  avec  $\bar{l}$  longueur moyenne des segments et  $\Lambda$  leur densité. En prenant  $\Lambda = S/D$  et  $\bar{l}$  de l'ordre de  $10^{-4}$  m, avec des sous-joints de quelques degrés de désorientation on obtient  $\Delta \approx 10^3$ .

Ce résultat montre que l'on peut envisager comme force de rappel la tension de ligne en ne considérant qu'une fraction de l'aire totale du joint. Dans ce cas les déplacements de dislocations sous l'effet de la contrainte se feront dans des endroits de moindre stabilité entraînant en quelque sorte la formation de "hernies" sur la paroi des défauts linéaires.

## ii) Temps de relaxation

Les valeurs élevées du temps de relaxation sans équivalent avec tout autre phénomène élémentaire dans la glace suggèrent une distribution de ces phénomènes élémentaires soit en série (18, 19, 20), soit en parallèle (21) conduisant à une expression du type:

$$\tan \varphi = \frac{G_i - G_r}{G_i} \frac{1}{1 + (j\omega\tau_r)^b}$$

Une représentation de Cole-Cole montre cependant (Fig. 6) qu'il n'y a pas

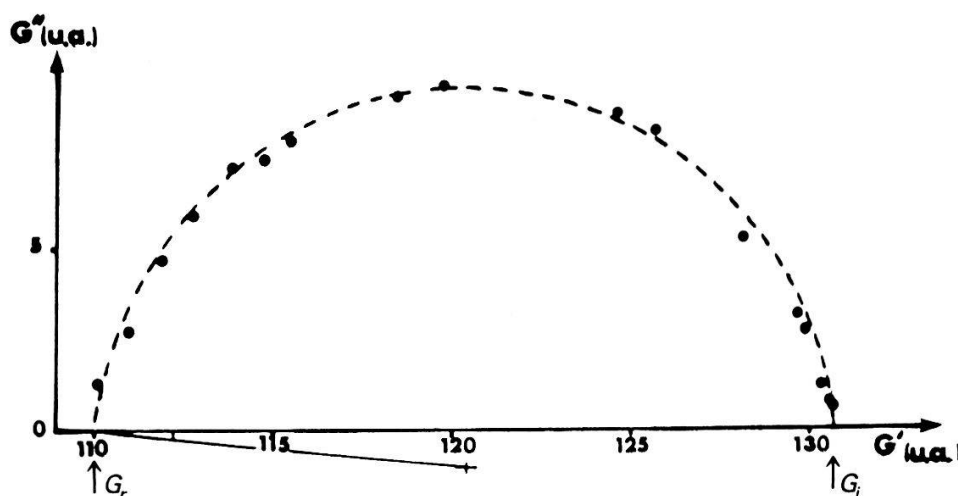


Figure 6  
Diagramme Cole-Cole  
Bicristal glace pure (joint || axe de torsion).

de distribution de temps de relaxation. Le phénomène élémentaire pour lequel intervient l'activation thermique implique des mouvements collectifs de molécules d'eau, indépendants les uns des autres et sensiblement comparables. Le temps de relaxation pourra s'écrire:

$$\tau_r = B/K = \tau_{\text{app}}^0 \exp(U/kT)$$

avec  $B = \sigma b/v_d$  et  $K = 6Gb^2/l^2$ .

En exprimant  $B$  à l'aide des diverses analyses de mouvements de dislocations (22, 23) il vient que ce terme peut s'écrire:

$$B \approx \tau_{\text{mol}} kT/b^3 = \tau_{\text{mol}}^0 \exp(U/kT) \cdot kT/b^3$$

où  $\tau_{\text{mol}}^0$  sera un temps caractéristique des phénomènes moléculaires.

$$\text{Alors } \tau_r = \tau_{\text{mol}}^0 \exp(U/kT) \cdot kT/b^3 \cdot l^2/6Gb^2$$

En faisant l'hypothèse d'une déformation du réseau de dislocations intrinsèques localisée dans certaines zones ("hernies"), on peut envisager la formation de ces hernies par franchissement d'une certaine barrière de potentiel  $\Delta G^*$ .

Par analogie avec un phénomène conduisant à une désorganisation totale conduisant à un joint complètement désordonné, on peut écrire:

$$\Delta G^* = nH(1 - T/T_c)$$

où  $n$  sera le nombre de molécules mises en jeu conduisant à cet état activé,  $T_c$  une température critique et  $H$  l'énergie nécessaire à la désorganisation d'une molécule. Une estimation de  $\Delta G^*$  sera possible en considérant que la désorganisation maximale sera atteinte par la fusion du joint; dans ce cas,  $\Delta G^* = nL(1 - T/T_f)$ , avec  $T_f$  = température de fusion et  $L$  = chaleur latente moléculaire. Cette barrière énergétique correspondra à une fréquence d'attaque moléculaire:

$$v = (v_0/n) \exp(-\Delta G^*/kT) = (v_0/n) \exp(nL/kT_f) \exp(-nL/kT)$$

La dépendance en température de cette fréquence d'attaque correspondra à celle observée expérimentalement. D'où

$$U/kT = nL/kT \quad \text{avec } L = 0.06 \text{ eV} \quad \text{et } U = 1.38 \text{ eV}$$

alors  $n \approx 20$  molécules, montrant le nombre limité de molécules participant à l'activation du phénomène.

Dans ce cas, le terme préexponentiel peut être calculé et est voisin de  $10^{36} \text{ s}^{-1}$ . Exprimé sous forme de temps caractéristique moléculaire  $\tau_{\text{mol}}^0$ , on aboutit alors à l'expression de  $\tau_r$ .

$$\tau_r \approx 10^{-36} kT/b^3 \cdot l^2/6Gb^2 \exp(U/kT) = \tau_{\text{app}}^0 \exp(U/kT).$$

En identifiant,  $\tau_{\text{app}}^0 \approx 10^{-28} \text{ s}$ , en bon accord avec la détermination expérimentale.

## Conclusion

L'utilisation des techniques de mesure de frottement interne TBF a permis d'étudier le phénomène de relaxation qui apparaît dans le cas de la glace polycristalline.

Les résultats expérimentaux mettent en avant le rôle joué par les joints de grains dans leur état d'équilibre et montrent que les paramètres structuraux de ceux-ci sont de première importance.

Un modèle basé sur l'hypothèse des dislocations intrinsèques en tant qu'entités relaxantes permet de décrire qualitativement le phénomène. En faisant l'hypothèse supplémentaire d'une déformation localisée ("hernies") du réseau de dislocations et par des mouvements moléculaires limités, il est possible d'explicitier la forte valeur de l'énergie d'activation apparente ainsi que la valeur très faible du terme préexponentiel.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] J. WEERTMANN, *Creep of ice*, in *Physics and Chemistry of Ice*, E. Whalley, S. J. Jones and L. W. Gold editors, Ottawa, Royal Soc. of Canada, (1973), 320–337.
- [2] D. R. HOMER, and J. W. GLEN, *J. of Glaciology*, 21, n° 85, (1978), 429–444.
- [3] M. MELLOR and R. TESTA, *J. of Glaciology*, 8, n° 52, (1969), 131–145.
- [4] D. KUROÏWA, Contr. n° 668, part II, Inst. Low. Temp. Sci. Hokkaido University A18, (1964), 38–48.
- [5] T. S. KE, *Phys. Rev.* 71, (1947), 533–546.
- [6] J. PEREZ, C. MAI, J. TATIBOUET et R. VASSOILLE, *Phys. Stat. Sol. (a)*, 52, (1979), 321–330.
- [7] J. TATIBOUET, J. PEREZ et R. VASSOILLE, *J. de Physique*, 47, (1986), 51–60.
- [8] J. TATIBOUET, J. PEREZ et R. VASSOILLE, *J. de Physique C10*, n° 12, 46, (1985), 339–342.
- [9] S. ETIENNE, J-Y. CAVAILLE, J. PEREZ et M. SALVIA, *J. de Physique C5*, 42, (1981), 1129–1134.
- [10] J. WOIRGARD, Thèse Doctorat ès-Sciences, Université de Poitiers, (1974).
- [11] A. RIVIERE, J. P. AMIRAL, et J. WOIRGARD, *J. de Physique*, C5, 42, (1981) 439–444.
- [12] R. VASSOILLE, Thèse Doctorat ès-Sciences, UCB Lyon 1, (1978).
- [13] A. HIGASHI, and N. SAKAI, *J. Phys. Soc. Japan*, 16, (1961), 2359–2360.
- [14] P. BARNES, D. TABOR and J. C. F. WALKER, *Proc. Roy. Soc. A34*, (1971), 127–155.
- [15] T. HONDOH and A. HIGASHI, *Phil. Mag.*, 39, n° 2, (1979), 137–149.
- [16] M. IGNAT et H. J. FROST, *J. de Physique C1*, 48, (1987), 189–203.
- [17] W. T. READ, in *Les Dislocations dans les Cristaux*, Dunod, Paris, (1957), 209–221.
- [18] K. L. NGAI and C. T. WHITE, *Phys. Rev. B*, 20, n° 6, (1979), 2475–2486.
- [19] R. G. PALMER, D. L. STEIN, E. ABRAHAMS and E. W. ANDERSON, *Phys. Rev. Letters*, 53, n° 10, (1984), 9958–9961.
- [20] J. PEREZ, *J. de Physique C10*, 46, (1985), 427–437.
- [21] G. SCHOECK, E. BISOGNI and J. SHYNE, *Acta Met.*, 12, (1964), 1466–1468.
- [22] R. W. WHITWORTH, J. G. PAREN and J. W. GLEN, *Phil. Mag.*, 33, n° 3, (1976) 409–426.
- [23] J. PEREZ, C. MAI and R. VASSOILLE, *J. of Glaciology*, 21, n° 85, (1978) 361–374.