

Transport électrique non linéaire dans les milieux granulaires 1D

E. Falcon, B. Castaing et M. Creyssels

Laboratoire de Physique, École Normale Supérieure de Lyon,

UMR 5672, 46, allée d'Italie, 69 007 Lyon, France

Eric.Falcon@ens-lyon.fr - <http://perso.ens-lyon.fr/eric.falcon/>

Résumé

Nous étudions le transport électrique dans une chaîne de billes métalliques oxydées, sous force statique appliquée, et soumise à une source électrique DC [1]. Une transition d'un état isolant vers un état conducteur est observée lorsque le courant appliqué augmente. Les caractéristiques symétriques tension - courant ($U - I$) sont non linéaires et hystériques, saturant à faible tension par contact (de l'ordre de 0.4 V). Nous avons montré que cette transition de conduction résulte d'un couplage électro-thermique dans le voisinage des microcontacts entre chaque bille: l'écoulement du courant à travers ces petites zones engendre leur échauffement local qui conduit à une augmentation de leurs aires de contact, et donc de leur conduction. Cette augmentation de température (jusqu'à 1000 - 1200 °C) peut aller jusqu'à leur fusion locale (même pour une tension aussi faible que 0.4 V). Basée sur ce mécanisme de température auto-régulée, une expression analytique pour la trajectoire non linéaire de retour $U - I$ a été obtenue en très bon accord avec les résultats expérimentaux. Elle permet aussi la détermination de la température des microcontacts sans paramètre ajustable, puisque cette dernière ne dépend ni des matériaux en contact, ni de la géométrie du contact.

L'effet Branly est une instabilité de conduction électrique qui apparaît au niveau des contacts entre les constituants d'une poudre métallique oxydée sous contrainte [2]. La résistance de l'échantillon, initialement élevée, chute de façon irréversible de plusieurs ordres de grandeur lorsqu'une onde électromagnétique est émise dans son voisinage. Découvert en 1890, cet effet à distance en regroupe d'autres, notamment lorsqu'une source électrique est directement appliquée à la poudre: une transition de conduction d'un état isolant à un état conducteur est observée lorsque la source dépasse un certain seuil, des fluctuations et des relaxations lentes de la résistance apparaissent au cours du temps sous certaines conditions [3, 4]. Bien qu'utilisés dès 1900 pour les premières transmissions radio sans fil, ces phénomènes de transport électrique dans un milieu granulaire restent sans explication parfaitement satisfaisante [4].

Depuis lors, plusieurs interprétations à l'échelle du contact ont été évoquées sans réelle démonstration: claquage diélectrique de la couche d'oxyde sur les grains [5], effet tunnel modifié à travers le métal - oxyde \sim semi-conducteur - métal [6], force cohésive entre grains de nature électrostatique ou moléculaire [7], soudure locale des microcontacts par effet Joule [8, 9] aussi appelée "fritting" [6]; chacun étant combiné avec un processus collectif de percolation [5, 7, 8]. Nous nous proposons ici de comprendre l'origine de cette transition de conduction électrique en nous basant sur une expérience modèle avec une chaîne de billes [1]. Nous chercherons à démêler les effets locaux (contacts entre grains) des effets collectifs (*e.g.*, désordre typique d'un granulaire) pouvant être responsable de cet effet Branly.

Comprendre la transition de conduction électrique dans les milieux granulaires métalliques est un problème complexe dépendant d'un nombre important de paramètres globaux relatifs à l'assemblée de grains (*e.g.*, distribution de forme, de taille, de pression),

et locaux relatifs au contact entre 2 grains (*e.g.*, degré d'oxydation, état de surface, rugosité). Parmi les phénomènes proposés ci-dessus pour expliquer la cohération, certains apparaissent comme des contributions secondaires : puisque la cohération a aussi été observée par Branly pour un contact unique entre 2 grains [10], la percolation ne peut pas être évoquée ici. De même, lorsque 2 billes en contact sont placées en série avec une pile, une cohération est observée pour une tension imposée suffisamment élevée [11], de façon similaire à l'action à distance d'une étincelle électromagnétique. Ainsi, nous réduisons ici délibérément le nombre de paramètres, sans perdre en généralité, en étudiant le transport électrique d'une chaîne de N billes métalliques directement soumise à une source électrique continue.

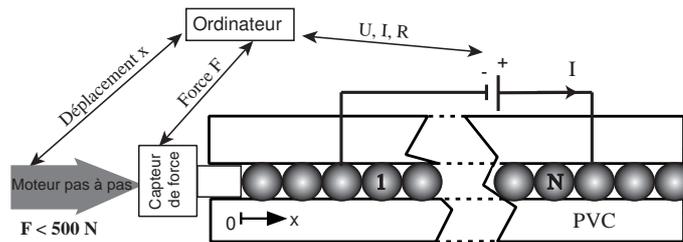


FIG. 1 – Schéma du dispositif expérimental pour l'étude du transport électrique non linéaire dans la chaîne de billes.

Le dispositif expérimental est schématisé en Fig. 1 : 50 billes identiques en acier inoxydable, de 8 mm de diamètre et $0.1 \mu\text{m}$ de rugosité, sont placées à l'intérieur d'un bâti en PVC. Un moteur pas à pas permet de comprimer la chaîne jusqu'à une force statique $F < 500 \text{ N}$, et de mesurer à l'aide d'un compteur la déformation totale de la chaîne, x , pour atteindre cette force. Lors d'une expérience typique, nous choisissons d'imposer à la chaîne une source de courant ($1 \mu\text{A} \leq I \leq 1 \text{ A}$) et de simultanément mesurer la tension U , et donc la résistance $R = U/I$. Des résultats similaires sont obtenus en imposant la tension et en mesurant I et R . Le nombre N de billes situées entre les "billes électrodes" peut varier de 1 à 41 en déplaçant les 2 billes électrodes au sein de la chaîne. Il est à noter que la plus basse résistance de la chaîne mesurée (quelques Ω) est bien plus grande que celle des fils soudés aux électrodes ou celle de l'acier inoxydable pur. Le comportement mécanique de la chaîne de billes est mesuré en très bon accord avec la loi non linéaire de Hertz (issue de l'élasticité linéaire), c'est-à-dire : $F \propto x^{3/2}$. Cela permet une estimation de l'échelle de déformation entre 2 billes de l'ordre de 2 à $20 \mu\text{m}$, et du rayon de contact apparent, A , de 40 à $200 \mu\text{m}$, pour des forces de compression de 10 à 500 N. Le comportement électrique est beaucoup plus surprenant ! Aucun soin particulier n'ayant été apporté aux billes, leur contact n'est pas métallique et la présence d'un film isolant (oxyde et/ou contaminant) de quelques nanomètres d'épaisseur est probable. Lorsque le courant appliqué à la chaîne augmente, nous observons une transition d'un état isolant vers un état conducteur, comme le montre la figure 2. A force fixée et à faible courant, la caractéristique tension - courant ($U - I$) est réversible et ohmique (flèche 1), la résistance ayant une valeur constante élevée R_0 . Cette résistance à bas courant ($R_0 \sim 10^4 - 10^7 \Omega$) dépend d'une façon complexe de la force appliquée et des propriétés (épaisseur, résistivité) du film contaminant à l'endroit des contacts. Lorsque I augmente suffisamment, la résistance décroît fortement pour que la tension aux bornes des billes reste à une valeur constante U_0 (flèche 2). Dès lors que cette tension de saturation U_0 est atteinte, la caractéristique devient irréversible lorsque le courant est diminué (flèche 3) : la trajectoire de retour est réversible et la résistance atteinte

à bas courant décroissant, R_{0b} (de l'ordre de $1 - 10 \Omega$), dépend de l'intensité maximale précédemment imposée I_{max} (flèches 3), à la manière d'un effet mémoire. La trajectoire de retour non linéaire réversible est aussi symétrique, lorsque le sens du courant appliqué à la chaîne est renversé (flèches 4 et 5). En répétant cette boucle symétrique jusqu'à différents I_{max} imposés (flèche en trait plein et en pointillé), et pour diverses forces F , on montre que les trajectoires de retour ne dépendent que de I_{max} , et suivent la même trajectoire de retour dans un diagramme U fonction de $R_{0b}I$ (cf. encart de la Fig. 2).

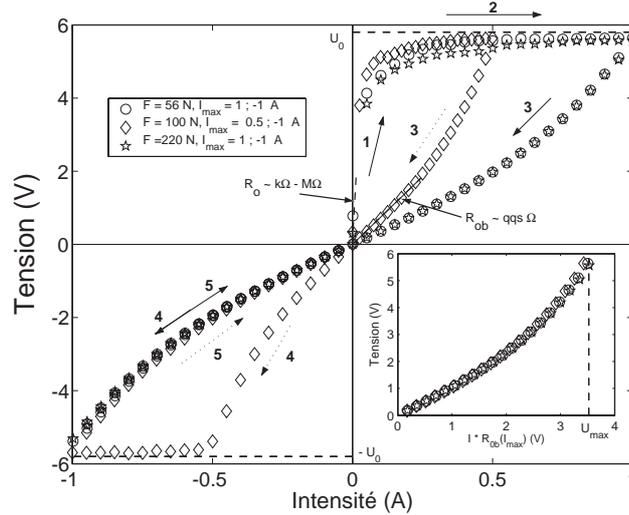


FIG. 2 – Caractéristiques $U - I$ symétriques d'une chaîne de $N = 13$ billes pour des cycles d'intensité appliquée compris entre $-I_{max}$ et $+I_{max}$, pour différentes forces F . L'encart montre les trajectoires de retour réversibles normalisées par R_{0b} . $U_{max} \equiv R_{0b}I_{max} \simeq 3.5$ V (voir texte).

La chute de résistance observée, de plusieurs ordres de grandeur (de R_0 à R_{0b}), a des propriétés similaires à l'effet Branly observé avec de la poudre [2] ou avec un contact unique [10, 11]. Il est à noter qu'après chaque cycle en intensité, la force de compression est ramenée à zéro et nous faisons rouler les billes le long de l'axe de la chaîne pour renouveler les contacts entre les billes pour le cycle suivant. Avec cette méthodologie, la chute de résistance (effet Branly ou effet cohéreur), et la tension de saturation sont toujours observées et sont bien reproductibles. Cette tension de saturation U_0 est indépendante de la force appliquée, mais dépend du nombre de billes N entre les électrodes. Lorsque N varie entre 1 et 41, la tension de saturation par contact $U_{0/c} \equiv U_0/(N + 1)$ est constante de l'ordre de 0.4 V par contact. Cependant, cette tension de saturation dépend faiblement du matériau constituant les billes ($U_{0/c} \simeq 0.4$ V pour les billes en acier inoxydable; 0.2 V pour des billes en bronze; 0.3 V pour des billes en laiton), mais reste du même ordre.

Supposons un contact mécanique entre 2 sphères métalliques couvertes par une fine couche isolante. L'interface ainsi constituée est généralement composée d'un ensemble dilué de microcontacts du fait de la rugosité des surfaces à une échelle spécifique. Le rayon moyen, a , de ces microcontacts est de l'ordre de grandeur de la rugosité typique des billes $\sim 0.1 \mu\text{m}$, qui est bien plus faible que le rayon de contact apparent de Hertz, $A \sim 100 \mu\text{m}$. La Fig. 3 montre schématiquement l'établissement du contact électrique par transformation de ce film faiblement conducteur. A faible courant appliqué, la résistance élevée du contact ($k\Omega - M\Omega$) provient d'un chemin de conduction trouvé par les électrons

injectés dans le film à travers une toute petite zone ($\ll 0.1 \mu\text{m}$) de chaque microcontacts (cf. zones grisées en Fig. 3). Le courant d'électrons modifie alors l'état du film et produit un "canal conducteur" : du fait du resserrement des lignes de courant au passage des microcontacts, un échauffement par effet Joule s'établit dans leurs voisinages. Le rayon des microcontacts augmente alors fortement de plusieurs ordres de grandeur (*e.g.*, de $a_i \ll 0.1 \mu\text{m}$ à $a_f \sim \text{qqs } 10 \mu\text{m}$), et par conséquent la résistance des contacts diminue alors fortement. Ceci conduit à une caractéristique non linéaire (flèche 1 jusqu'à 2 en Fig. 2). A plus grand courant, ce processus électro-thermique peut aller jusqu'à la soudure locale des microcontacts (flèche 2 en Fig. 2), le film isolant est alors "percé", et des petites zones de contacts purement métalliques (de quelques Ω) se forment (cf. zones noires en Fig. 3). La caractéristique de retour $U - I$ est alors réversible (flèche 3 en Fig. 2) en diminuant puis en augmentant I , car la taille finale a_f des microcontacts ne varie plus, puisqu'ils ont été soudés. La courbe de retour $U - I$ dépend alors uniquement de la température du pont métallique via ses paramètres (conductivités électrique et thermique) et non plus via sa taille comme précédemment.

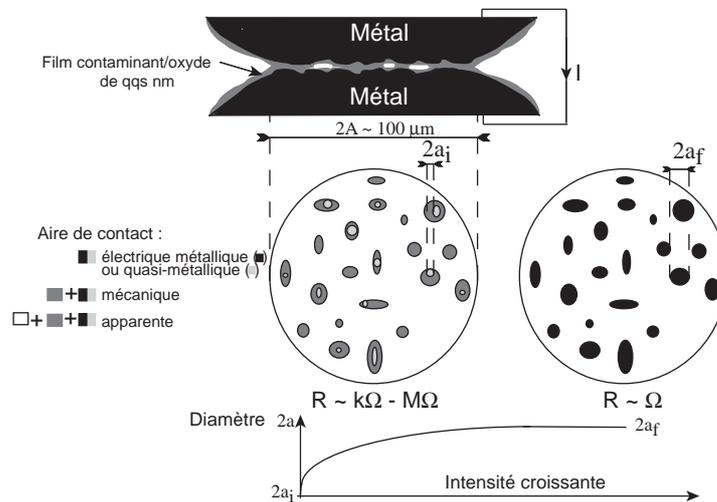


FIG. 3 – Vue schématique de la construction du contact électrique à travers des ponts par transformation du film d'oxyde/contaminant faiblement conducteur. A faible intensité I , le contact électrique est essentiellement régi par un mécanisme de conduction complexe à travers ce film via des canaux conducteurs (de sections augmentant avec I); tandis qu'à I suffisamment grand, un couplage electro-thermique engendre une soudure locale des microcontacts conduisant à la création de ponts métalliques bon conducteurs (de section constante).

Nous allons maintenant justifier quantitativement cette interprétation. Supposons un microcontact entre 2 conducteurs métalliques (thermiquement isolé à une température T_0 , et sans film contaminant à leurs surfaces pour simplifier), généralement appelé "spot". Si un courant électrique suffisant traverse ce spot pour produire un échauffement Joule, supposé totalement dissipé par conduction thermique dans les conducteurs, une distribution de température d'équilibre s'établit alors très rapidement ($\sim \mu\text{s}$) au voisinage de ce contact. La température maximale atteinte T_m se trouve au contact, et est reliée à la tension appliquée U selon $T_m^2 - T_0^2 = U^2/(4L)$, où $L = \pi^2 k^2/(3e^2) = 2.4510^{-8} \text{ V}^2/\text{K}^2$ est la constante de Lorentz faisant intervenir la constante de Boltzmann, k , et la charge de

l'électron, e . Cette relation issue de l'équilibre thermique et de la loi d'Ohm montre que la température maximale atteinte au contact ne dépend pas des matériaux en contact, ni de la géométrie du contact ! Ceci a pour origine le fait que la résistivité électrique $\rho_{el}(T)$ et la conductivité thermique $\lambda(T)$ d'un conducteur sont toutes deux liées aux électrons de conduction, imposant ainsi que leur dépendance respective avec la température, T , soit $\lambda\rho_{el} \sim T$. Ainsi, une tension de 0.4 V appliquée aux bornes d'un contact conduit à une température T_m proche de 1000°C, pour $T_0 = 20^\circ\text{C}$ (cf. l'équation ci-dessus reliant U à T_m). Cela signifie que $U \simeq 0.3 - 0.4$ V conduit à une température de contact qui excède le point de ramollissement et/ou de fusion de la plupart des conducteurs. Des ponts métalliques sont ainsi créés par microsoudure. Outre l'accord quantitatif avec la tension critique expérimentale $U_{0/c}$ (cf. Fig. 2), cette équation montre aussi pourquoi $U_{0/c}$ est le paramètre pertinent dans les expériences et non pas l'amplitude du courant imposé. De plus, lorsque U approche $U_{0/c}$ sur la Fig. 2, l'échauffement local est suffisant d'après l'équation ci-dessus pour ramollir les microcontacts. Ainsi, leurs aires de contact augmentent, conduisant à une diminution des résistances locales, stabilisant alors la tension, les températures et les aires des microcontacts, puisque l'intensité est fixée. Le phénomène est donc auto-régulé en tension et en température.

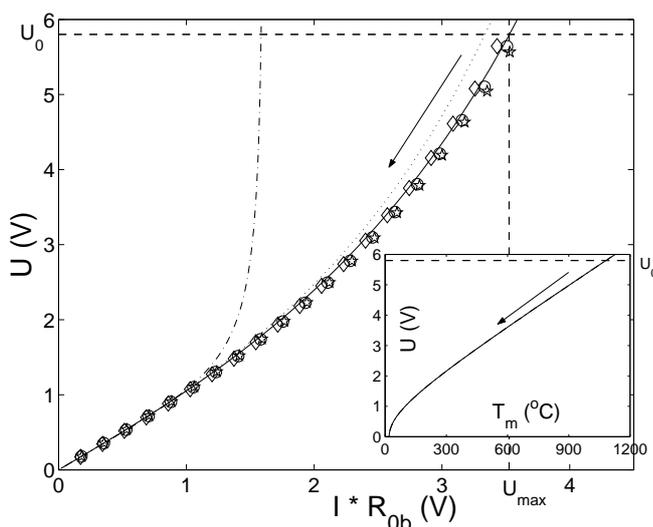


FIG. 4 – Trajectoires expérimentales de retour normalisées de la Fig. 2 (symboles) comparées aux courbes théoriques obtenues dans le cas d'un alliage en acier inoxydable [$\alpha^{-1} = 2T_0$ (—) et $1.46T_0$ (···)] ou pour un métal pur (—·—). L'encart montre la température maximale théorique, T_m , atteinte dans un contact lorsque la chaîne de 13 billes en acier inox est soumise à une tension U .

Basée sur ce couplage électro-thermique, une expression analytique pour la trajectoire non linéaire de retour $U - I$ a été obtenue. Là encore, cette expression ne dépend pas de la géométrie du contact, ni du type de métal utilisé pour le contact (pour 2 métaux en contact) ! Cependant, dans le cas d'alliages en contact, elle dépend du coefficient de température de la résistivité α propre à l'alliage, paramètre lié aux défauts présents dans l'alliage. Les trajectoires expérimentales de retour $U - I$ normalisées (*i.e.*, U en fonction IR_{0b} de l'encart de la Fig. 2) sont alors comparées sur la Fig. 4 avec les solutions théoriques dans le cas des métaux purs, et d'un alliage d'acier inoxydable AISI 304. Un très bon accord est trouvé notamment pour le cas de l'alliage. Qualitativement, la solution pour

le cas de l'alliage possède une meilleure courbure que la solution métal pur. L'accord est quantitativement excellent (cf. Fig. 4) en prenant $\alpha^{-1} = 2T_0$ au lieu de $1.46T_0$ (la valeur pour de l'acier inox AISI 304) ; celle pour l'acier inox AISI 420 constituant les billes utilisées étant inconnue, mais doit être proche. Durant cette trajectoire de retour expérimentale, la température d'équilibre, T_m , au microcontact est déduite de l'équation du paragraphe ci-dessus, sans aucun paramètre ajustable (voir encart de la Fig. 4). Ainsi, lorsque la tension critique est atteinte ($U_0 = 5.8$ V), T_m est proche de 1000 - 1200°C, qui est suffisant pour ramollir ou faire fondre les microcontacts entre les $N = 13$ billes de la chaîne.

En conclusion, nous avons étudié le transport électrique dans une chaîne de billes métalliques oxydées sous force statique appliquée. Une transition d'un état isolant vers un état conducteur est observée lorsque le courant appliqué augmente. La caractéristique $U - I$ est non linéaire hystérétique et sature à faible tension par contact (0.4 V). Les phénomènes électriques dans les matériaux granulaires reliés à cette transition de conduction tels que l'effet Branly ont été précédemment interprétés de différentes façons mais sans réelle démonstration. Ici, nous avons montré que cette transition, déclenchée par la tension de saturation, résulte d'un couplage électro-thermique dans le voisinage des microcontacts entre chaque billes : l'écoulement des lignes de courant à travers ces petites zones engendre leur échauffement local qui conduit à une augmentation de leurs aires de contact, et donc de leur conduction. Cette augmentation de température (jusqu'à 1000 - 1200°C) peut aller jusqu'à leur fusion locale (même pour une tension aussi faible que 0.4 V). L'expression analytique est obtenue pour la trajectoire non linéaire de retour $U - I$ en très bon accord avec les résultats expérimentaux. Elle permet aussi la détermination de la température des microcontacts sans paramètre ajustable.

Remerciements

Nous remercions D. Bouraya pour la réalisation mécanique du dispositif expérimental, et G. Kamarinos pour l'envoi de ses articles [5].

Références

- [1] E. Falcon, B. Castaing & M. Creyssels, à paraître dans Eur. Phys. J B (2004) (cf. Cond-Mat/0311453).
- [2] E. Branly, C. R. Acad. Sc. Paris **111**, 785 (1890).
- [3] E. Falcon, B. Castaing & C. Laroche, Europhys. Lett. **65**, 186 (2004).
- [4] E. Falcon & B. Castaing à paraître dans le Bull. de la S.F.P. **143** ou **144** (2004).
- [5] G. Kamarinos, P. Viktorovitch & M. Bulye-Bodin, C. R. Acad. Sc. Paris **280**, 479 (1975).
- [6] R. Holm, *Electrical Contacts*, Springer-Verlag, 4th Ed. (2000).
- [7] R. Gabillard & L. Raczy, C. R. Acad. Sc. Paris **252**, 2845 (1961), G. Salmer & R. Gabillard, C. R. Acad. Sc. Paris **262**, 1043 (1966).
- [8] D. Vandembroucq, A. C. Boccara & S. Roux, J. Phys. III **7**, 303 (1997).
- [9] S. Dorbolo, M. Ausloos & N. Vandewalle, Phys. Rev. E **67**, 040302(R) (2003).
- [10] E. Branly, C. R. Acad. Sc. Paris **134**, 1197 (1902); **134**, 347 (1902); **128**, 1089 (1899)
- [11] K. Guthe & A. Trowbridge, Phys. Rev. **11**, 22 (1900); K. Guthe, Phys. Rev. E **12**, 245 (1901)