# **Contrôle des propriétés radiatives de corps par nanostructuration de leur surface : Application au refroidissement radiatif**

**Armande Hervé<sup>1\*</sup>, Jérémie Drevillon<sup>1</sup>, Younès Ezzahri<sup>1</sup>, Karl Joulain<sup>1</sup>** <sup>1</sup>Institut Pprime, CNRS, Université de Poitiers, ISAE-ENSMA, F-86962 Futuroscope Chasseneuil, France \*(auteur correspondant : armande.herve@univ-poitiers.fr)

**Résumé** - Dans le but d'une application au refroidissement radiatif, nous cherchons à obtenir des structures réfléchissantes dans le spectre visible et émettantes dans la fenêtre spectrale de transparence de l'atmosphère (8-13 $\mu$ m). Nous choisissons une approche combinant les capacités de contrôle de l'émission thermique des réseaux et des multi-couches. Des réseaux de BN, SiC et SiO<sub>2</sub> (uniquement 1D pour le moment) ont été choisis et optimisés pour la position de leurs pics d'émissivité situés dans la zone transparente de l'atmosphère. Ces réseaux, combinés à des multi-couches métal/diélectrique optimisés, permettent d'avoir une réflexion quasi-totale dans le spectre solaire et, ainsi, d'obtenir une température d'équilibre de la structure inférieure à la température ambiante. La structure se refroidit par conséquent, plus vers l'espace qu'elle n'est chauffée par le rayonnement.

## 1. Introduction

L'idée de refroidir une structure chauffée par le rayonnement solaire en optimisant son émission thermique est le principe de base du refroidissement radiatif. Pour réaliser un refroidissement en plein jour, une forte émission dans la zone transparente de l'atmosphère (8-13µm), ainsi qu'une réflexion quasi-totale dans le spectre solaire sont nécessaires. L'obtention simultanée de ces deux propriétés est cependant difficile à obtenir.

Des études ont déjà proposé des structures se rapprochant de ce mode d'émission original. Des matériaux avec des propriétés radiatives sélectives ont été proposés [1-5], mais leur domaine spectral de forte ou de faible émissivité ne coïncide pas forcément avec les prescriptions requises. Certains s'intéressent au refroidissement radiatif des systèmes thermophotovoltaïques, nécessitant une certaine absorption dans le spectre solaire, avec par exemple des cristaux photoniques [6] ou des structures originales qui servent d'émetteurs thermiques sélectifs [7-10]. Enfin, des structures multi-couches [11], associées ou non à des cristaux photoniques [12] ou dopées avec des particules de TiO2 [13], permettent d'obtenir un refroidissement efficace en plein jour.

Le but de ce travail est d'imaginer d'autres configurations, qui combinent les capacités de contrôle de l'émission thermique des réseaux et des multi-couches. En effet, depuis une quinzaine d'années, nous savons qu'il est possible de créer des sources directionnelles et monochromatiques en gravant un réseau micrométrique à la surface d'un matériau polaire supportant des phonon-polaritons de surface, tels que le SiC ou le SiO2 [14-17].

En couplant ces réseaux permettant une émission thermique sélective à d'autres structures, comme certains multi-couches qui ont aussi des propriétés d'émission éloignées des sources thermiques classiques lambertiennes [18], nous pouvons potentiellement contrôler les propriétés radiatives des surfaces et concevoir des corps avec des propriétés émissives très

particulières (émission sur une bande très étroite de longueur d'onde et réflexion totale sur le reste du spectre par exemple).

Nous nous attacherons tout d'abord à rappeler le principe du refroidissement radiatif et sa quantification. Puis nous définirons plus précisément les structures étudiées, leurs propriétés et la méthode de calcul utilisée pour optimiser nos structures et calculer leur pouvoir de refroidissement radiatif. Enfin nous présenterons nos résultats pour les structures choisies et détaillerons les contributions des différentes parties.

## 2. Principe du refroidissement radiatif

Le refroidissement radiatif consiste à concevoir une structure émettant fortement entre 8 et 13  $\mu$ m dans la fenêtre de transparence de l'atmosphère et réfléchissant partout ailleurs pour éviter l'absorption du rayonnement solaire.

La puissance de refroidissement pour chaque structure optimisée est calculée de la manière suivante :

$$P_{cool}(T) = P_{rad}(T) - P_{atm}(T_{amb}) - P_{sun} - P_{cond+conv}$$
(1)

Où  $P_{rad}(T) = \int d\Omega \cos\theta \int_{0}^{\infty} d\lambda I_{BB}(T,\lambda) \varepsilon(\lambda,\theta)$  est la puissance rayonnée par la structure par

unité de surface, l'intégration du  $d\Omega = 2\pi^* d\theta \sin \theta$  est l'intégrale angulaire entre  $\theta=0$  et  $\pi/2$  sur un hémisphère, I<sub>BB</sub>(T,  $\lambda$ ) est la luminance du corps noir à la température T et  $\epsilon(\lambda, \theta)$  l'émissivité spectrale et angulaire de la structure optimisée.

$$P_{atm}(T_{amb}) = \int d\Omega \cos\theta \int_{0}^{\infty} d\lambda I_{BB}(T_{amb},\lambda) \varepsilon(\lambda,\theta) \varepsilon_{atm}(\lambda,\theta)$$
(2)

est la puissance absorbée par unité de surface, due au rayonnement atmosphérique incident.

L'émissivité de l'atmosphère est donnée par :  $\varepsilon_{atm}(\lambda, \theta) = 1 - t(\lambda)^{1/\cos\theta}$  où  $t(\lambda)$  représente la transmittance atmosphérique dans la direction du zénith.

$$P_{sun} = \int_{0}^{\infty} d\lambda \varepsilon(\lambda, \theta_{sun}) I_{AM1.5}(\lambda)$$
(3)

est la puissance solaire absorbée par la structure par unité de surface, où l'éclairement solaire est représenté par  $I_{AM.1.5}(\lambda)$ , le spectre AM1.5 correspondant au spectre solaire après traversée d'une épaisseur 1.5 fois l'épaisseur de l'atmosphère. On considère que la structure fait face au soleil à l'angle  $\theta_{sun}$ , on n'utilise donc que l'émissivité de la structure à cet angle.

$$P_{cond+conv}(T, T_{amb}) = h_c(T_{amb} - T)$$
(4)

est la puissance perdue par unité de surface due à la convection et à la conduction, avec  $h_c$  un coefficient combinant les transferts de chaleur dus à la conduction et à la convection.

## 3. Approche du problème – méthodologie



## 3.1. Design de la structure et propriétés des matériaux étudiés

Figure 1 : Structure type étudiée

La structure étudiée est une structure multi-couches surmontée d'un réseau lamellaire 1D gravé à la surface de la couche supérieure.

#### 3.1.1. Apport du réseau théorique

Les 3 paramètres définissant le réseau sont : la période d, la profondeur h et le coefficient de remplissage F. Les matériaux considérés pour le réseau dans cette étude sont le SiC (Carbure de Silicium), le SiO2 (dioxide de silicium-verre) et le BN (nitrure de bore). Ces 3 matériaux polaires possèdent des ondes de surfaces appelées SPP (surface phononspolaritons), ce sont des ondes évanescentes qui existent seulement en champ proche. Si un réseau micrométrique est gravé à la surface d'un de ces matériaux, on peut diffracter les ondes de surface et les coupler à une onde propagative en champ lointain. Ces réseaux ont été choisis pour la position de leurs pics d'émissivité situés dans la zone transparente de l'atmosphère (8-13 $\mu$ m).

#### 3.1.2. Apport de la structure multi-couches

Ces réseaux combinés à des multi-couches métal/diélectrique optimisés permettent d'obtenir une température d'équilibre de la structure inférieure à la température ambiante. La structure se refroidit ainsi plus vers l'espace qu'elle n'est chauffée par le rayonnement. Pour obtenir un bon refroidissement, il est essentiel d'avoir une réflexion quasi-totale dans le spectre solaire. Une couche de métal, par exemple d'argent, utilisée comme substrat ou souscouche peut permettre cette réflexion. Les multi-couches séparant le réseau et le métal peuvent ensuite être combinées à partir de matériaux aux propriétés optiques intéressantes (fort indice, optiquement transparent, ...) pour inhiber ou augmenter l'émission sur une large bande ou encore pour créer de nouveaux pics d'émission. L'alternance d'un matériau transparent et d'un matériau absorbant peut aussi être utilisée pour former une cavité résonante. Enfin, une couche de matériau inerte peut être placée entre 2 couches simplement pour permettre la fabrication de la structure.

#### 3.2. RCWA couplé à l'OEP

Nous utilisons la méthode RCWA (Rigorous Coupled-Wave Analysis) pour résoudre les équations de Maxwell. Nous obtenons ainsi l'émissivité du réseau en fonction de ses paramètres (profondeur *h*, période *d* et coefficient de remplissage *F*) et des conditions aux limites (longueur d'onde  $\lambda$  et angle d'incidence  $\theta$  du champ incident). Tout d'abord, le champ diffracté est calculé par la structure pour tous les ordres de diffraction. A partir de ce champ, on obtient les énergies absorbées et réfléchies. L'émissivité est déduite de l'énergie absorbée via la loi de Kirchoff.

Chateau et Hugonin ont donné une description détaillée de l'algorithme pour la polarisation s [19]. Li a ensuite résolu quelques problèmes numériques spécifiques qui apparaissaient pour l'algorithme en polarisation p [20,21]. Le code utilisé, appelé RETICOLO, a été développé par J.P. Hugonin et P. Lalanne de l'institut d'optique à Paris. Une formulation de l'approche RCWA utilisée dans RETICOLO peut être trouvée dans [22,23]. Les réseaux considérés sont uniquement 1D pour cette étude, donc les pics d'émissivité produits seront limités à la polarisation TM.

Pour cette étude, nous avons couplé RETICOLO à un code d'optimisation par essaim particulaire (OEP), en fixant comme cible à atteindre notre structure idéale émettant fortement entre 8 et 13  $\mu$ m et totalement réfléchissante dans le spectre solaire. L'OEP a été présenté pour la 1<sup>ère</sup> fois par Kennedy et Eberhart [24]. Il se construit sur un système collaboratif des différentes particules, qui permet de converger vers des minimums, i.e. la cible à atteindre. Les 3 actions de base d'un algorithme d'OEP peuvent être résumé par : évaluer, comparer et imiter. Pour converger vers la cible, chaque particule décide de son prochain mouvement en prenant en compte sa vitesse actuelle, sa meilleure solution et la meilleure solution de ses voisines (ses informatrices) [25].

### 4. Résultats

#### 4.1. Expression 1D

Nous avons obtenu des structures offrant un refroidissement radiatif prometteur pour chaque type de matériau formant le réseau. Cependant, nous détaillerons de manière approfondie uniquement le réseau de SiO2 et la structure multi-couche qui lui est associée.

La structure optimisée est composée d'un multi-couche Ag-BN-SiC-BN-SiO2 surmonté d'un réseau de SiO2 comme présenté sur la figure 2 :



Figure 2 : Structure multi-couches +réseau SiO2

On reporte sur les figures ci-dessous le calcul de l'émissivité de la structure en fonction de la longueur d'onde comparée à l'émissivité cible (Fig 3), ainsi que le calcul de l'émissivité en fonction de la longueur d'onde et de l'angle d'incidence de la structure par rapport au rayonnement incident (Fig 4) :



Figure 3 : Emissivité en fonction de la longueur d'onde de la structure multi-couche + réseau SiO2 comparée à l'émissivité ciblée

Figure 4 : *Emissivité de la même structure en fonction de la longueur d'onde et de l'angle d'incidence par rapport au rayonnement incident* 

Nous avons bien des pics d'émissivité proche de 1 se situant dans la zone 8-13µm qui se rapproche de l'émissivité cible d'une structure idéale que nous avions fixée dans l'OEP. La structure multi-couche joue donc bien son rôle d'amplificateur, étant donné que l'émission d'un réseau simple de SiO2 se traduit par un unique pic d'émissivité vers 9 µm. De l'émission dans le spectre solaire, il ne reste plus qu'un pic qui diminue rapidement dès 0.4 µm et qui contribue donc peu à l'absorption du rayonnement solaire par la structure et ainsi permet un bon refroidissement. Lorsque l'on prolonge ces résultats en traçant l'émissivité en fonction de la longueur d'onde et de l'angle d'incidence  $\varepsilon$  ( $\lambda$ ,  $\theta$ ), on remarque qu'ils varient peu en fonction de l'angle d'incidence. Cela est particulièrement intéressant pour l'obtention d'un bon refroidissement. En effet,  $\varepsilon$  ( $\lambda$ ,  $\theta$ ) intervient dans le calcul de P<sub>cool</sub>, notamment pour obtenir Prad. Plus l'émissivité se rapproche de 1 dans la zone 8-13µm, plus Prad augmente sans que les autres termes n'en soient grandement influencés et cela permet donc un meilleur refroidissement. L'autre terme que l'on peut optimiser pour améliorer le refroidissement est P<sub>sun</sub>, et cela en diminuant au maximum l'absorption dans la zone 0.3-4µm. Enfin, la dernière solution est de s'affranchir au maximum de la convection et de la conduction autour de la structure. Quelques interprétations seront proposées dans la partie suivante.

On présente ensuite dans le tableau ci-dessous les caractéristiques de la structure présentée ci-dessus et de 2 autres structures permettant un bon refroidissement en utilisant des réseaux de SiC et de BN:

Réseau	Réseau			Couche 1	Couche 2	Couche 3	Couche 4	Couche 5
	d (µm	ı), F et	h (µm)	d1 (µm)	d2 (µm)	d3 (µm)	d4 (µm)	d5 (µm)
1	SiO2			SiO2	BN	SiC	BN	Ag
	4.46	0.42	0.539	0.763	0.374	0.492	1.218	0.63
2	SiC			SiC	SiO2	SiC	BN	Ag
	3.28	0.4	0.457	0.03	0.808	0.812	0.942	0.929
3	BN			BN	SiC	SiO2	Ag	/
	3.83	0.59	0.998	0.0711	0.686	1.0313	0.99	/

Tableau 1 : Matériaux et paramètres de 3 structures optimisées pour le refroidissement radiatifavec des réseaux de SiO2 ; SiC et BN

Il est donc possible d'avoir un refroidissement significatif avec les 3 types de matériaux pour le réseau, moyennement une bonne optimisation de la structure (multi-couche et réseau).

### 4.2. Interprétation des résultats

Les 3 types de matériaux pour le réseau peuvent potentiellement produire de bons refroidissements, car ils possèdent tous des pics d'émissivité situés dans la zone transparente de l'atmosphère (8-13µm). Il est important de bien choisir la période du réseau. En effet, selon sa période, un réseau peut produire des pics directionnels (qui ne peuvent être vus que selon un seul angle d'incidence) ou isotropes (pic à la même longueur d'onde pour tous les angles d'incidence). Par exemple, pour le SiC, une petite période produira un pic isotrope et une grande période produira un pic directionnel. Les réseaux optimisés ont tous des petites périodes et produisent donc de base des pics d'émissivité isotrope.

Pour les structures multi-couches, nous avons dans un 1<sup>er</sup> temps considéré uniquement des métaux et des matériaux polaires pour les fabriquer.

Les matériaux polaires qui constituent la partie supérieure des multi-couches sont des matériaux supportant des SPP. Ces modes de surfaces non radiatifs pourraient donc être couplés par l'intermédiaire du réseau vers des modes propagatifs. En clair, l'assemblage de multi-couches permet d'augmenter la présence de certains pics déjà présents et d'en faire apparaître d'autres. Cependant, contrairement aux réseaux simples où il est possible de prévoir la position et l'origine des pics, ce n'est pas forcément le cas quand on mélange multi-couches et réseaux. En cela, l'OEP devient extrêmement utile pour optimiser nos structures en « forçant » l'apparition de nouveaux pics dans la zone 8-13µm.

La couche métallique sous la structure multi-couches permet quant à elle de diminuer drastiquement l'absorption dans la zone du spectre solaire. Pour diminuer au maximum l'absorption, l'argent semble être le meilleur métal.

#### 4.3. Ouverture vers les réseaux 2D

Les réseaux considérés sont uniquement 1D pour cette étude. Cependant, cela pose un problème pour d'éventuelles applications, car les pics d'émissivité produits par les réseaux 1D existent en général uniquement pour la polarisation TM. Pour avoir des résultats pour les 2 polarisations, il faudra passer à des réseaux 2D. Théoriquement, il suffirait juste de changer le réseau 1D en réseau 2D ayant des propriétés similaires. En le couplant avec une structure multi-couche similaire à celle optimisée pour le réseau, nous devrions obtenir un bon refroidissement. Une étude est en cours pour convertir les structures optimisées avec des réseaux 1D vers des réseaux 2D.

#### 5. Conclusion

Nous avons montré qu'il était possible d'obtenir des structures peu émissives dans le visible et très émissives dans la fenêtre de transparence de l'atmosphère, avec des structures combinant des multi-couches et des réseaux. Les réseaux présentant déjà des pics dans la zone 8-13µm, la structure multi-couches sert à amplifier et créer de nouveaux pics dans cette zone tout en cherchant un objectif de réflexion totale sur le reste du spectre.

Une étude sur la possibilité de superposition des diverses couches lors de la fabrication et une ouverture vers des réseaux 2D permettra de s'approcher des applications. Par exemple, une structure avec une couche d'Ag et de couches d'HfO2 et de SiO2 surmontées d'un réseau de SiO2 peut être plus adaptée pour la déposition des couches. On peut remplacer le HfO2 par du TiO2 ayant des propriétés similaires, mais moins onéreux.

Il pourrait aussi être intéressant de changer de cible d'émissivité idéale, tout en gardant l'émissivité totale entre 8 et  $13\mu$ m et la réflectivité totale entre 0.3 et 4  $\mu$ m : on peut par exemple essayer d'obtenir une réflectivité totale uniquement pour le spectre solaire entre 0.3 et 4  $\mu$ m et avoir une émissivité égale à 1 de 4 à 20 $\mu$ m.

#### Références

- [1] C.G. Granqvist and A. Hjortsberg, Surfaces for radiative cooling: Silicon monoxide films on aluminium, *Appl. Phys. Lett.*, 36 (1980), 139.
- [2] C. G. Granqvist, A. Hjortsberg and T. S. Eriksson, Radiative cooling to low temperatures with selectively IR-emitting surfaces, *Electronics and optics*, Thin Solid Films 90 (1982), 187-190
- [3] B. Orel, M. Klanjsek Gunde and A. Krainer, Radiative cooling efficiency of white pigmented paints, *Solar Energy*, 50 (6) (1993), 477-482.
- [4] T. Nilsson, G. Niklasson and C. G. Granqvist, A solar reflecting material for radiative cooling applications: ZnS pigmented polyethylene, *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 28 (1992), 175-193.
- [5] T. Nilsson and G. Niklasson, Radiative cooling during the day: simulations and experiments on pigmented polyethylene cover foils, *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 37 (1995), 93-118.
- [6] L. Zhu, A. Raman and S. Fan, Radiative cooling of solar absorbers using a visibly transparent photonic crystal thermal blackbody, *PNAS*, 112 (40) (2015), 12282-12287.
- [7] L. Zhu et al., Radiative cooling of solar cells, *Optica*, 1(1) (2014), 32-38.

- [8] T. Safi and J. Munday, Improving photovoltaic performance through radiative cooling in both terrestrial and extraterrestrial environments, *Optics express*, 23 (19) (2015), A1120-8.
- [9] S-H. Wu and M. Povinelli, Solar heating of GaAs nanowire solar cells, *Optics express*, 23 (24) (2015), A1363-72.
- [10] Z. Zhou, X. Sun and P. Bermel, Radiative cooling for thermophotovoltaic systems, *Proc. SPIE* 9973, *Infrared Remote Sensing and Instrumentation XXIV* (2016).
- [11] A. Raman et al., Passive radiative cooling below ambient air temperature under direct sunlight, *Nature*, 515 (2014), 540-544.
- [12] E. Rephaeli, A. Raman and S. Fan, Ultrabroadband photonic structures to achive high-performance daytime radiative cooling, *Nano. Lett.*, 13 (2013), 1457-1461.
- [13] Z. Huang and X. Ruan, Nanoparticle embedded double-layer coating for daytime radiative cooling, *Int. J. of Heat and Mass Transfer*, 104 (2016), 890-896.
- [14] J-J. Greffet et al., Coherent emission of light by thermal sources, *Nature*, 416(6876) (2002), 61–64.
- [15] F. Marquier et al., Coherent spontaneous emission of light by thermal sources, *Phys. Rev. B*, 69(15) (2004), 155412.
- [16] N. Dahan et al., Space-variant polarization manipulation of a thermal emission by a SiO2 subwavelength grating supporting surface phonon-, *Appl. Phys. Lett.*, 86(19) (2005), 191102.
- [17] C. Arnold et al., Coherent thermal infrared emission by two dimensional silicon carbide gratings, *Phys. Rev. B*, 86(3) (2012), 035316.
- [18] E. Nefzaoui et al., Selective emitters design and optimization for thermophotovoltaic applications, Journal of Applied Physics, 111 (8) (2012), 084316.
- [19] N. Chateau and J-P. Hugonin, Algorithm for the rigorous coupled-wave analysis of grating diffraction, *Journal of the Optical Society of America A*, 11(4) (1994), 1321.
- [20] L. Li, Use of Fourier series in the analysis of discontinuous periodic structures, *Journal of the Optical Society of America A*, 13(9) (1996), 1870–1876.
- [21] L. Li, Formulation and comparison of two recursive matrix algorithms for modeling layered diffraction gratings, *Journal of the Optical Society of America A*, 13(5) (1996), 1024.
- [22] M. G. Moharam, T. K. Gaylord, Eric B. Grann, and Drew A. Pommet, Formulation for stable and efficient implementation of the rigorous coupled wave analysis of binary gratings, *Journal of the Optical Society of America A*, 12(5) (1995), 1068–1076.
- [23] P. Lalanne and G. M. Morris, Highly improved convergence of the coupled wave method for TM polarization, *Journal of the Optical Society of America A*, 13(4) (1996), 779–784.
- [24] J. Kennedy and R. Eberhart, Particle swarm optimization, *Proc. Int. Conf. Neural Networks*, 4:1942-1948 (1995), 84, 86.
- [25] M. Clerc, L'optimisation par essaim particulaires, Hermes Science Publications (2004).

#### Remerciements

This work is partially funded by the French Government Program "Investissements d'Avenir" (LABEX INTERACTIFS, reference ANR-11-LABX-0017-01).