

Application de la théorie de la réponse nonlocale macroscopique de la fonction diélectrique pour l'étude du transfert radiatif de chaleur en champ proche entre deux matériaux diélectriques thermostatiques

Farah SINGER, Younès EZZAHRI and Karl JOULAIN

Institut Pprime, CNRS-Université de Poitiers-ENSMA, ENSIP, Département Fluides, Thermique, Combustion, Bâtiment de mécanique, 2 rue Pierre Brousse, F-86000 Poitiers.

Le travail présenté dans cet article est une étude du transfert radiatif en champ proche entre deux matériaux plans diélectriques de carbure de silicium (SiC) lorsque la distance de séparation d entre eux tend vers zéro. Alors que l'utilisation d'une permittivité diélectrique locale en espace conduit à une divergence non physique du flux radiatif en d^{-2} , lorsque d tend vers zéro, l'application d'une théorie non-locale tenant compte de la diffusion des ondes électromagnétiques à la surface conduit dans cette situation à une saturation du transfert radiatif en champ proche.

T : Température, K

ε : Permittivité diélectrique, $F.m^{-1}$

ω : Fréquence angulaire de l'onde EM, $rad.s^{-1}$

d : Distance de séparation, m

k_B : Constante de Boltzmann, $J.K^{-1}$

c : Célérité de la lumière dans le vide, $m.s^{-1}$

\hbar : Constante réduite de Planck, $J.s.rad^{-1}$

K : Vecteur d'onde parallèle à la surface m^{-1}

q : Vecteur d'onde normal à la surface m^{-1}

σ : Constante de Stefan–Boltzmann, $W.m^{-2}.K^{-4}$

Φ : Densité du flux radiatif de chaleur, $W.m^{-2}$

h_{rad} : Coefficient de transfert radiatif de chaleur, $W.m^{-2}.K^{-1}$

r : Coefficient de réflexion généralisé de Fresnel.

Z : Impédance de surface.

1. Introduction

Ces dernières années, une recherche théorique et expérimentale croissante a été consacrée à l'étude du transfert de chaleur en champ proche (TCCP) en raison des phénomènes fondamentaux mis en jeu [1-3] et du potentiel d'applications importantes dans plusieurs technologies telles que les cellules solaires et les sources thermophotovoltaïques [4], la nanolithographie [5] ainsi que les sources de lumière sub-longueur d'onde [6]. Dans la théorie classique du rayonnement thermique [7], le transfert de chaleur par rayonnement (TCR) entre deux corps est maximal lorsqu'ils se comportent comme deux corps noirs. Cette théorie est mise en défaut lorsque les distances de séparation entre les deux corps considérées sont de l'ordre ou inférieures à la longueur d'onde thermique (Longueur d'onde de Wien) $\lambda_T = \hbar c/k_B T$. Dans ce domaine de paramètres, ($d \leq \lambda_T$), des contributions physiques supplémentaires s'ajoutent au TCR tels que celles dues aux ondes évanescentes transmises par effet tunnel entre les surfaces. Ces contributions dominent aux courtes distances mais s'atténuent exponentiellement quand la distance augmente [1,6,8]. La contribution de ces ondes évanescentes augmente le TCR fortement jusqu'à dépasser la valeur du flux échangé entre deux corps noirs de plusieurs ordres [3,8].

Les études théoriques de TCR entre deux surfaces en utilisant une permittivité diélectrique locale ont montré une divergence infinie selon une loi $1/d^2$ lorsque la distance de séparation tend vers 0 [3,8]. A la suite de ces prédictions théoriques, des études expérimentales ont montré une augmentation importante du flux de chaleur aux échelles micrométriques [9,10] tandis que d'autres réalisées par Kittel et al [11] ont montré que le TCR saturait pour des métaux à température ambiante à des distances de l'ordre de quelques dizaines de nanomètre.

La divergence en $1/d^2$ du flux de chaleur a conduit certains auteurs à suggérer que l'inclusion de la dispersion spatiale pouvait conduire à une saturation du flux [3,8] et à une levée de la divergence. Dans ce cas, la permittivité diélectrique dépend non seulement de la fréquence mais aussi du vecteur d'onde du champ électromagnétique (EM). Pour le cas de deux plans métalliques, Chapuis et al. [12] ont étudié le modèle non local de la permittivité diélectrique due à Lindhard et Mermin et ont montré que le TCR ne divergeait plus, y compris à distance nulle. Notons que pour des métaux, l'essentiel de la contribution provient, aux distances nanométriques, des ondes polarisées S qui saturent à des distances de l'ordre de la profondeur de peau y compris en utilisant une théorie locale. Tel n'est pas le cas pour les diélectriques où la contribution dominante est celle des ondes en polarisation P qui sont celles qui divergent en $1/d^2$. L'utilisation d'une théorie non-locale s'avère donc essentielle aux distances nanométriques dans cette situation.

2. Formalisme du transfert de chaleur radiatif

L'électrodynamique fluctuatoire (EF) introduite par Rytov [3,13] explique qu'un corps de température T rayonne un champ électromagnétique en raison des courants aléatoires générés par des électrons dans les métaux ou des ions dans les cristaux polaires. Les propriétés de ces courants sont données par le théorème de fluctuation-dissipation (FDT) qui relie la fonction de corrélation des courants aux pertes radiatives moyennes. Le flux radiatif émis est donné par le vecteur de Poynting $\mathbf{1/2 Re}\{\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) \times \mathbf{H}^*(\mathbf{r}, \omega)\}$, où $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$ et $\mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega)$ sont les champs électriques et magnétiques [3].

Lorsque le champ EM varie sur une échelle spatiale grande par rapport à les longueurs caractéristiques microscopiques du milieu de propagation, le milieu est local et les propriétés optiques ne dépendent que de la fréquence du champ EM. Lorsque ce n'est pas le cas, le

milieu est non- local, autrement dit les propriétés optiques dépendent du vecteur d'onde du champ EM [3,8].

La densité de flux de chaleur radiatif (DFCR) Φ entre deux plans semi- infinies à l'équilibre thermodynamique local, maintenus à des températures T_1 et T_2 et séparés par une distance d (Figure 1) peut être calculée au moyen de l'électrodynamique fluctuationnelle. Lorsque la différence de température est faible $(T_1 - T_2)/T_1 \ll 1$, Φ peut être linéarisée (Eq. 1) et écrite comme un coefficient de transfert de chaleur par rayonnement (CTCR) multiplié par la différence de température (Eq . 2) [2,3,8]:

$$\phi(T, d) = h_{rad} \delta T \quad (1)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} h_{rad}(T, d) = \sum_{\alpha=S,P} \int_0^{+\infty} d\omega [h_{prop}^{\alpha}(T, d, \omega) + h_{evan}^{\alpha}(T, d, \omega)] \\ h_{prop}(T, d, \omega) = h^0(T, \omega) \times \int_0^{\omega/c} \frac{KdK (1 - |r_{31}^{\alpha}|^2)(1 - |r_{32}^{\alpha}|^2)}{k_0^2 |1 - r_{31}^{\alpha} r_{32}^{\alpha} e^{2i\gamma_3 d}|^2} \\ h_{evan}(T, d, \omega) = h^0(T, \omega) \times \int_{\omega/c}^{+\infty} \frac{4KdK \text{Im}(r_{31}^{\alpha}) \text{Im}(r_{32}^{\alpha}) e^{2i\gamma_3 d}}{k_0^2 |1 - r_{31}^{\alpha} r_{32}^{\alpha} e^{2i\gamma_3 d}|^2} \end{array} \right. \quad (2)$$

$k_0 = \omega/c$, K et $\gamma_3 = \sqrt{\omega^2/c^2 - K^2}$ sont les composantes du vecteur d'onde parallèle et perpendiculaire à la surface dans le vide, respectivement. r_{31}^{α} et r_{32}^{α} représentent les facteurs de réflexion des ondes de polarisation $\alpha = S, P$ pour les ondes venant du milieu 3 et se réfléchissant sur les milieu 1 et 2, respectivement (Eq. 3). $h^0(T, \omega)$ est la dérivée de la luminance du corps noir par rapport à la température (loi de Planck) (Eq. 4). Les coefficients de réflexion sont donnés par les lois suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} r_{3m}^p = \frac{\gamma_3 - \varepsilon_3 \omega Z_m^p}{\gamma_3 + \varepsilon_3 \omega Z_m^p} \\ r_{3m}^s = \frac{c^2 \gamma_3 Z_m^s - \omega}{c^2 \gamma_3 Z_m^s + \omega} \end{array} \right. \quad (3)$$

$h^0(T, \omega)$ est donnée par l'expression suivante :

$$h^0(T, \omega) = \frac{\hbar \omega^3}{4\pi^2 c^2} \frac{\hbar \omega}{k_B T^2} \left[2 \sinh \left(\frac{\hbar \omega}{2k_B T} \right) \right]^2 \quad (4)$$

On notera que l'équation du CTCR est la somme de contributions des ondes propagatives ($K < k_0$) et évanescentes ($K > k_0$) de polarisations S et P. Les facteurs de réflexion dépendent de l'impédance de surface entre les milieux 3 et $m=1, 2$ Z_m^{α} définie par le rapport de la composante parallèle du champ électrique sur la composante parallèle du champ magnétique multipliée par c .

Les calculs ont été effectués pour le carbure de silicium non dopé de type 6H (6H-SiC), un matériau polaire non- magnétique et caractérisé par une structure cristalline hexagonale avec un rapport de constantes de réseau $c/a \approx 4.9$. En raison de ses propriétés semiconductrices et réfractaires [14], la configuration cristalline du SiC est la plus largement utilisée particulièrement à des hautes températures.

Nous commençons par rappeler les résultats que l'on obtient lorsque l'on considère des propriétés locales pour le SiC. On considère deux plans 6H -SiC de températures $T_1 = 299.5 K$ et $T_2 = 300.5 K$ de sorte que la température moyenne du système soit $T = 300 K$. En

substituant la fonction diélectrique locale de Drude-Lorentz (Eq. 5) [15], dans les équations générales des impédances de surface (Eq. 6) et en utilisant le fait que la composante longitudinale et la composante transversale de la fonction diélectrique sont égales à la limite statique ($\varepsilon(\omega) = \lim_{k \rightarrow 0} \varepsilon_t(k, \omega) = \lim_{k \rightarrow 0} \varepsilon_l(k, \omega)$).

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty \left(1 + \frac{\omega_p^2}{\omega_T^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} \right) \quad (5)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} Z_m^p = \frac{2i}{\pi\omega} \int_0^{+\infty} \frac{dq}{k^2} \left[\frac{q^2}{\varepsilon_t(k, \omega) - (ck/\omega)^2} + \frac{K^2}{\varepsilon_l(k, \omega)} \right] \\ Z_m^s = \frac{2i}{\pi\omega} \int_0^{+\infty} \frac{dq}{\varepsilon_t(k, \omega) - (ck/\omega)^2} \end{array} \right\} \quad (6)$$

On obtient alors les expressions des facteurs de réflexion qui se réduisent à celles des facteurs de réflexion classiques de Fresnel (Eq. 7).

$$\left\{ \begin{array}{l} r_{3m}^p = \frac{\varepsilon_m \gamma_3 - \varepsilon_3 \gamma_m}{\varepsilon_m \gamma_3 + \varepsilon_3 \gamma_m} \\ r_{3m}^s = \frac{\gamma_3 - \gamma_m}{\gamma_3 + \gamma_m} \end{array} \right\} \quad (7)$$

En substituant l'Eq. (7) dans les expressions de l'Eq. (2), on obtient le CTCR comme fonction de la distance de séparation d . La figure 2 illustre la variation du CTCR en fonction de d dans le cas d'un modèle local de fonction diélectrique de Drude-Lorentz.

Sur ces graphes, on observe que le terme évanescents de polarisation P présente la divergence bien connue en $1/d^2$. Cela est dû à la présence des polaritons de surface qui augmentent la densité d'états électromagnétiques à proximité de la surface. Cette divergence infinie du terme évanescents de polarisation P ne peut être physique à de très petites distances car elle implique un transfert infini d'énergie. Nous considérerons donc dans la suite un comportement non local de la matière par l'introduction d'une fonction diélectrique non locale pour lever cette divergence [3,8].

3. La théorie non locale macroscopique de la permittivité diélectrique

A l'interface d'un milieu non-local, une onde EM incidente donne naissance à deux ondes transversales et une onde longitudinale supplémentaire. Dans ce cas, les conditions aux limites habituelles de la continuité des composantes tangentielles de E et H ne sont pas suffisantes pour résoudre le problème de la transmission. Des conditions aux limites supplémentaires (CLS) qui impliquent des conditions sur le vecteur de polarisation, doivent être considérées en plus. Le problème qui se pose est que ces CLS ne sont pas uniques, laissant la voie à plusieurs modélisations pour les propriétés optiques non-locales.

Dans la théorie proposée par Halevi et Fuchs [16], différentes conditions développées par différents auteurs sont incluses. L'excitation électromagnétique à la surface de matériaux diélectriques est autorisée, et des effets de dispersion spatiale conduisent à l'addition d'un terme dépendant du carré de vecteur d'onde k dans l'expression de la fonction diélectrique (Eq. 8).

$$\varepsilon(\omega, k) = \varepsilon_\infty \left(1 + \frac{\omega_p^2}{\omega_T^2 - \omega^2 - i\gamma\omega + Dk^2} \right) \quad (8)$$

où $D = \hbar\omega_T/(m_e + m_h)$, m_e et m_h sont, respectivement, les masses d'électrons et de trous, γ est le facteur d'amortissement, et ω_T est la fréquence transversale. D peut être interprété comme un coefficient de diffusion des porteurs de charge dans le matériau.

Les CLS peuvent être paramétrées par des grandeurs supplémentaires, appelées les paramètres de diffusion surfacique, imposés dans le calcul des impédances et des facteurs de réflexion du système (Eq. 9). Ces paramètres dépendent de la nature de la polarisation du champ EM (U_y pour la polarisation S, U_x et U_z pour la polarisation P) (Eq. 10).

$$\alpha_j \rho(0^+) + \beta_j \partial \rho(0^+)/dz = 0 \quad j = x, z \quad (9)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\alpha_j}{\beta_j} = i\Gamma \frac{1 - U_j}{1 + U_j} \quad j = x, z \\ \Gamma = [(\omega^2 - \omega_T^2 - DK^2 + i\gamma\omega)/D]^{1/2} \end{array} \right\} \quad (10)$$

Où ρ est la polarisation.

Les expressions dérivées de la réflectivité et la susceptibilité sont dépendent de ces paramètres de la dispersion. Halevi et Fuchs ont montré que des valeurs différentes des paramètres de diffusion surfacique permettent de décrire les CLS données par différents auteurs (Tableau 1).

CLS	U_x	U_y	U_z
Kliewer & Fuchs	1	1	-1
Rimbey & Mahan	-1	-1	1
Pekar	-1	-1	-1
Ting et al.	1	1	1
Agarwal et al.	0	0	0

Tableau 1. Paramètres de diffusion surfacique proposés par cinq auteurs.

Les facteurs de réflexion sont obtenus à partir des impédances de surfaces locales et non-locales selon les expressions suivantes:

$$\left\{ \begin{array}{l} r_p = \frac{Z_p - Z_p^{Local}}{Z_p + Z_p^{Local}} \\ r_s = \frac{Z_s - Z_s^{Local}}{Z_s + Z_s^{Local}} \end{array} \right\} \quad (11)$$

4. Résultats et discussion

La figure 3 illustre les variations du CTCR dans le cas du modèle non-local de la fonction diélectrique, en fonction de la distance de séparation d entre les deux plans parallèles et semi-infinis du SiC.

À de grandes distances d par rapport à la longueur d'onde thermique, la valeur du CTCR est limitée à la contribution des ondes propagatives et est un petit peu inférieure à la valeur du CTCR classique de corps noir $4\sigma T^3$ [3, 8]. D'une part, à grandes distances, les ondes évanescentes décroissent de manière exponentielle et ne contribuent pas au CTCR. D'autre part le SiC est très absorbant sur une large gamme spectrale mais pas autour de 10.6 microns où il est réfléchissant. Le terme de polarisation P donne une contribution légèrement supérieure à celle en polarisation S en raison de l'existence de l'angle de Brewster pour lequel la réflexion en polarisation P s'annule (permettant ainsi une absorption plus forte). Pour une distance de l'ordre

de la longueur d'onde thermique, les contributions des ondes évanescentes au CTCR deviennent dominantes. Leur décroissance est faible de sorte que ces ondes peuvent être transmises par effet tunnel entre les surfaces. En plus, dans l'intégration sur les vecteurs d'onde parallèles dans l'expression du CTCR, l'intégration est limitée à l'inverse de la distance de séparation.

Pour de grands vecteurs d'onde K , la limite statique du facteur de réflexion $r_{3m}^S = \varepsilon - 1/4(K/k_0)^2$ tend vers zéro conduisant à une saturation du flux de chaleur à des distances plus petites que l'épaisseur de peau. La contribution du terme de polarisation P est importante lorsque les matériaux supportent des ondes de surface comme les phonon-polaritons dans le cas de SiC. En polarisation P, le facteur de réflexion $r_{3m}^P \approx (\varepsilon - 1)/(\varepsilon + 1)$ donne une valeur finie non nulle qui correspond à une forte augmentation de la densité d'états EM qui augmente à la surface comme $1/d^2$ pour les petites distances. Cette augmentation est particulièrement forte pour les fréquences pour lesquelles la constante diélectrique s'approche de -1 car le coefficient de réflexion peut prendre de grandes valeurs. Ceci explique l'augmentation du CTCR avec la distance dans le cas local comme représenté dans la figure 2.

Dans la figure 3, nous observons que jusqu'à une distance d'environ $d \approx 10^{-7}m$, les CTCR calculés dans les deux modèles local et non-local sont presque identiques. On remarque ainsi que le modèle non-local converge vers le modèle local lorsque les distances de séparation sont grandes et que les nombres d'onde parallèles mise en jeu ne sont pas trop grands. Lorsque la distance entre les surfaces diminue, des contributions de nombres d'ondes parallèles de plus en plus grands entrent en jeu. Dans ce régime des grands K , les coefficients de réflexion tendent vers $(\varepsilon - 1)/(\varepsilon + 1)$ dans le cas local en prenant une valeur finie en général non nulle tandis qu'ils tendent vers 0 dans le cas non local. Ce comportement explique ainsi ce que l'on peut observer sur la figure 3 à savoir que le CTCR sature en dessous d'une certaine valeur de la distance de séparation.

Chaque courbe non locale représentée sur la figure 3 correspond à un ensemble différent de CLS. Nous observons bien que le CTCR sature à une certaine valeur en dessous d'une certaine distance de séparation. Les ondes propagatives de polarisations S et P sont inchangées dans le cas local et le cas non local. En effet, ces contributions dominantes à grandes distances n'impliquent que de petites valeurs de K pour lesquelles les coefficients de réflexion sont inchangés dans le cas local et le cas non-local.

Comme dans le cas local, la contribution des ondes évanescentes de polarisation S sature dans le cas non-local. La valeur de saturation est légèrement inférieure mais du même ordre que celle obtenue dans le cas local. Les courbes représentant les contributions des ondes évanescentes de polarisation P change radicalement lorsque l'on passe du cas local au cas non-local. On note une saturation à partir de distances $d \approx 10^{-8}m$, la région où le graphe dévie de la pente $1/d^2$. Notons que cette distance est de l'ordre de celle correspondant à des vecteurs d'onde pour lesquels le terme Dk^2 sera dominant dans l'expression de la constante diélectrique non-locale. Pour que ce terme soit dominant il suffit que $Dk^2 \gg \omega_T^2$. En prenant un nombre d'onde critique à une certaine distance égal à $k \sim 2\pi/d$, on trouve une distance critique de l'ordre de $\sqrt{D4\pi^2/\omega_T^2}$ qui vaut 5 nm.

D'autre part, en comparant les courbes représentant les différents CLS, nous observons que ceux de Ting et al. et Kliewer & Fuchs ont montré deux pics à des distances $d_1 \approx 1 \times 10^{-8}m$ et $d_2 = 2 \times 10^{-8}m$, respectivement. L'origine de ces pics reste à découvrir. D'autre part, les courbes issus des CLS de Rimbey et Mahan et Agarwal et al. coïncident à une certaine valeur de saturation tandis que celles correspondant aux CLS de Pekar et Kliewer et Fuchs coïncident à une autre valeur. Là encore, la valeur précise de ces grandeurs reste à déterminer dans le cadre d'un futur travail.

5. Conclusions

Dans cet article, nous avons étudié le TCR entre deux plans 6H- SiC semi- infinis lorsque la distance de séparation entre eux tend vers zéro. Nous avons montré que la théorie non-locale qui prend en compte la dispersion des champs EM à la surface et la dépendance à la dispersion spatiale dans l'équation de la permittivité diélectrique, conduit à la saturation du flux de chaleur radiatif pour des distances de séparations nulles. Pour la modélisation des propriétés optiques non-locales, des conditions aux limites supplémentaires ont été imposées pour résoudre les équations de Maxwell et les relations de passages entre les champs. Cinq ensembles différents de conditions aux limites supplémentaires ont été donnés par cinq différents auteurs. Nous avons étudié ces différents cas, et nous avons montré que la saturation du CTCR a été obtenu dans tous les cas non locaux, par opposition à la divergence observée en appliquant une permittivité diélectrique locale.

Nous avons également montré que la contribution des ondes propagatives de polarisations S et P n'ont pas été affectés par la non-localité comme elles dominent dans le régime de champ lointain ou les effets non-locaux sont négligeables. La contribution des ondes évanescentes S saturent dans les cas local et non-local à des valeurs comparables, tandis que la contribution des ondes évanescentes de polarisation P sature lorsque l'on prend en compte la non-localité à des distances de quelques nanomètres.

Un travail futur consistera à interpréter plus finement les graphes obtenus et leurs caractéristiques importantes (les pics montrés par les graphes de Kliewer et Fuchs et Ting et al, la coïncidence de quelques graphes, etc.). Il s'agira, en comparant les courbes théoriques avec de futures mesures expérimentales de rayonnement thermique en champ proche de trancher entre les différentes conditions aux limites supplémentaires et de proposer un modèle de la fonction diélectrique non-locale unique pour les diélectriques.

Références

- [1] E. G. Cravalho et al., J. Heat Transfer 89 (1967), 351.
- [2] D. Polder and M. Vanhove, Phys. Rev. B 4 (1971), 3303.
- [3] K. Joulain et al; Surf. Sci. Rep.57 (2005), 59–112.
- [4] B. Guha et al ; Nano Lett. 12 (2012), 4546–4550.
- [5] B. J. Lee et al. , J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer 109 (2008), 608.
- [6] L. Martin-Moreno et al. , Phys. Rev. Lett. 90 (2003), 167401.
- [7] M. Planck, The Theory of Heat Radiation “Dover, New York, 1959”,Ch. 1, p:1–21.
- [8] A. Volokitin et B. Persson ; Rev. Mod. Phys. 79 (2007), 1291-1329.
- [9] E. Rousseau et al; Nat. Photonics 3 (2009), 514 – 517.
- [10] T. Kralik et al ; PRL 109 (2012), 224302.
- [11] A. Kittel, et al; PRL 95 (2005), 224301.
- [12] P. Chapuis et al; Phys. Rev. B 77 (2008), 035431.
- [13] S. Rytov, Sov. Phys. JETP 6 (1958), 130.
- [14] R. K. Willardson & E. R. Weber, *SiC Materials and Devices*, Vol. 52 (1998).
- [15] Palik Handbook of Optical Constants vol. 1 (1985).
- [16] P. Halevi et R. Fuchs; J. Phys. C: Solid State Phys. 17 (1984), 3869-3888.

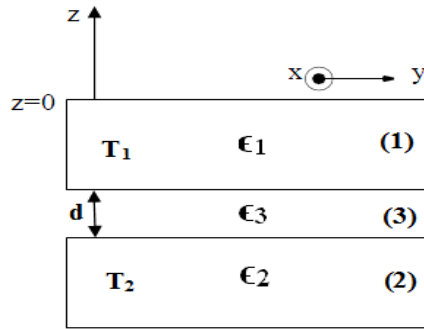


Figure 1: Deux milieux plans semi-infinis séparés par une distance d .

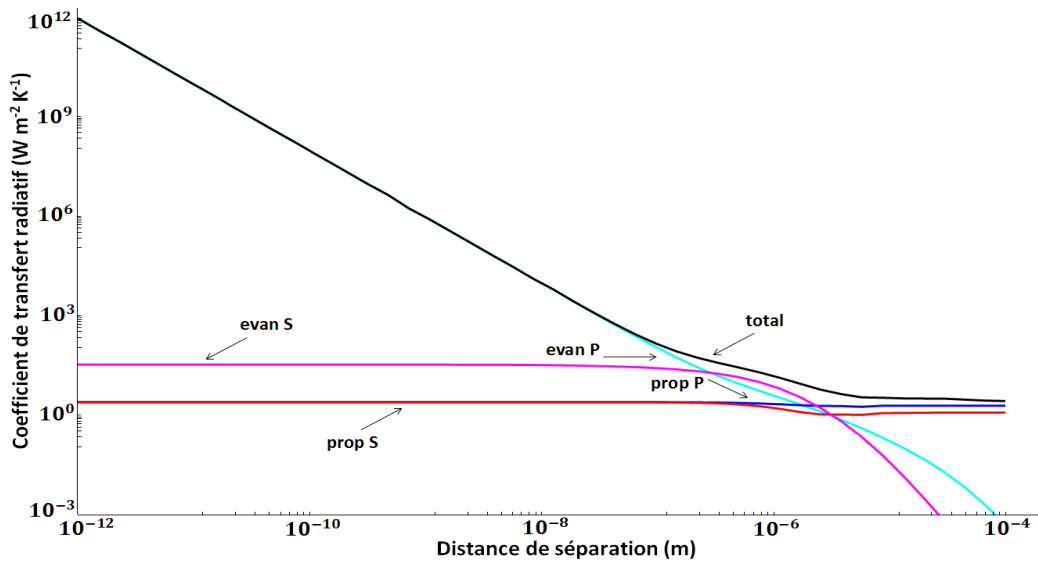


Figure 2: Variation du coefficient de transfert de chaleur radiatif (contribution des ondes évanescentes et propagatives) entre deux milieux plans semi-infinis de Carbone de Silicium pour le cas local.

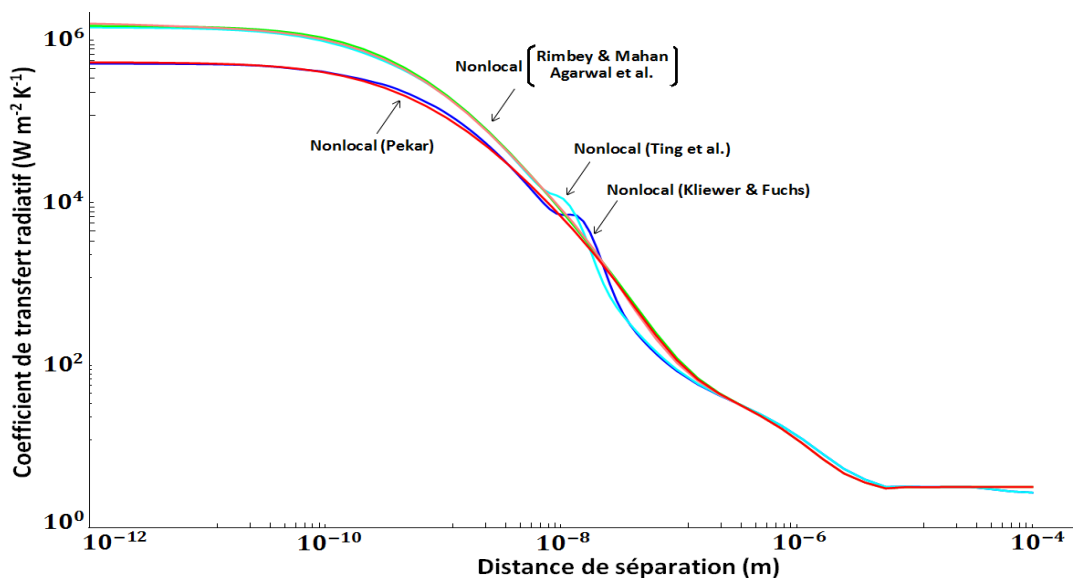


Figure 3: Variation du coefficient de transfert de chaleur radiatif total entre deux milieux plans semi-infinis de Carbone de Silicium pour différents modèles non-locaux.