

# Application d'un modèle nonlocal de la permittivité diélectrique pour l'étude du transfert radiatif 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.

On présente dans ce papier, une étude du transfert radiatif en champ proche entre deux matériaux plans diélectriques du SiC séparés par un nano-espace. Lorsque la distance de séparation  $d$  entre les matériaux devient inférieure à la longueur d'onde thermique, le flux radiatif augmente. L'application d'un modèle local de la permittivité diélectrique  $\varepsilon$  conduit à l'apparition d'une divergence non physique vers l'infini du flux radiatif quand  $d$  tend vers zéro. Nous montrons ici, qu'avec l'application d'un modèle non local de  $\varepsilon$ , le flux radiatif sature à une valeur maximale lorsque  $d$  est de l'ordre de la taille de la maille du réseau cristallin constituant le diélectrique.

$T$	Température, $K$	$\omega$	Fréquence de l'onde EM, $s^{-1}$
$d$	Distance de séparation, $m$	$\hbar$	Constante de Planck, $J.s$
$k_B$	Constante de Boltzmann, $J.K^{-1}$	$\sigma$	Constante de Stefan-Boltzmann,
$c$	Célérité de la lumière dans le vide $m.s^{-1}$		$W.m^{-2}.K^{-4}$

## 1. Introduction

L'étude du transfert radiatif de chaleur en champ proche (TRCCP) entre deux matériaux solides est devenue un sujet de recherche en plein essor depuis une dizaine d'année. En plus de l'aspect purement fondamental, cet engouement est en partie lié aux multiples et potentielles applications technologiques pourront tirer profit de cette recherche, particulièrement dans le développement des cellules photovoltaïques et des sources thermophotovoltaïques [1, 2].

Dans la théorie classique du rayonnement, le transfert radiatif entre deux solides dans le vide est maximal quand les deux solides se comportent comme des corps noirs [3]. La situation change radicalement quand la distance de séparation devient de l'ordre ou plus petite que la longueur d'onde thermique (longueur de Wien). Celle-ci est donnée par  $\lambda_T = \hbar c/k_B T$ , où  $\hbar$  est la constante de Planck,  $c$  désigne la célérité de la lumière dans le vide,  $k_B$  est la constante de Boltzmann, et  $T$  représente la température absolue. A ces distances, d'autres effets physiques intéressants entrent en jeu particulièrement le transfert de chaleur par effet tunnel d'ondes évanescentes [4-8]. Avec ces effets additionnels pris en compte, le transfert radiatif de chaleur entre les deux solides subit une forte augmentation et devient même supérieur à la limite du corps noir de plusieurs ordres de grandeur [7, 8].

Les études théoriques faites sur la base d'un modèle local de la permittivité diélectrique où cette dernière dépend uniquement de la fréquence [7, 8], ont montré que plus la distance de séparation  $d$  entre les deux solides, est petite, plus les contributions additionnelles au TRCCP, deviennent prépondérantes. De plus, le TRCCP tend à suivre une loi en  $d^2$  [7, 8]. Tandis que quelques expériences ont confirmé cette loi d'échelle avec des distances de séparation allant jusqu'à quelques nanomètres [9], d'autres expériences comme celle de Kittel et al [10], ont par contre, montré que le TRCCP sature quand  $d$  devient de l'ordre ou inférieure au nanomètre [9, 10]. Comme un flux de chaleur infini lorsque les deux solides s'approchent l'un de l'autre jusqu'au contact physique parfait ( $d \rightarrow 0$ ) n'est pas physique, la divergence en  $d^2$  est un point de faille de la théorie locale. Plusieurs auteurs ont suspecté les effets de dispersion spatiale dans la permittivité diélectrique d'être responsables de la saturation du TRCCP à de très petites distances de séparation  $d$  [7, 8]. Dans ce cas, le modèle est dit nonlocal où la permittivité diélectrique dépend à la fois de la fréquence du champ électromagnétique (EM) et de son vecteur d'onde [11].

Dans un récent papier, Chapuis et al ont étudié l'effet d'un modèle nonlocal de la permittivité diélectrique dans le cas de deux matériaux métalliques plans semi-infinis et parallèles. Les auteurs ont montré que la prise en compte des effets nonlocaux entraîne justement une saturation du TRCCP à des distances de séparation de l'ordre ou plus petites que la profondeur de peau [11]. Ces calculs ont ainsi confirmé les observations expérimentales de Kittel et al [10].

La forte augmentation du TRCCP entre deux métaux plans semi-infinis et parallèles est due à la présence de courants de surface puis de plasmon-polaritons de surface pour des distances inférieurs à l'angström, tandis que ce sont les phonon-polaritons qui jouent le rôle clé et qui font la grande contribution au TRCCP dans le cas des matériaux diélectriques [7, 8].

L'objectif du présent papier est l'analyse du TRCCP entre deux matériaux diélectriques plans semi-infinis et parallèles dont les surfaces contiennent des phonon-polaritons, dans le régime où les effets nonlocaux sont importants. On considère le carbure de

silicium (6H-SiC) comme cas d'étude auquel on applique le modèle nonlocal de la permittivité diélectrique proposé par Kliewer et Fuchs [12].

## 2. Modélisation du TRCCP par la Théorie d'Electrodynamique Fluctuationnelle (TEF)

Les premiers travaux de Rytov et ses collaborateurs ont montré que le rayonnement thermique d'un corps trouve son origine dans le mouvement aléatoire des charges électriques dans le corps, plus particulièrement au niveau de sa surface. Ainsi les propriétés du rayonnement thermique peuvent être calculées en utilisant la TEF [5, 6]. Dans le cadre de cette théorie, on parle de dispersion temporelle (i.e., dépendance en fréquence des propriétés optiques) quand le champ EM varie sur des échelles de temps comparables aux échelles de temps microscopiques caractéristiques du milieu dans lequel il se propage, et on parle de dispersion spatiale (i.e., dépendance en vecteur d'onde des propriétés optiques) lorsque le champ EM varie sur une échelle spatiale comparable aux longueurs microscopiques caractéristique du milieu de propagation [7, 8].

On utilise le terme « nonlocal » pour caractériser la dispersion spatiale d'une certaine propriété physique du milieu. Dans notre cas, la permittivité diélectrique est dite nonlocale quand celle-ci dépend à la fois de la fréquence et du vecteur d'onde du champ EM.

Le point de départ de notre analyse est l'expression bien établie de la densité du flux radiatif de chaleur  $\Phi$  entre deux matériaux solides plans semi-infinis et parallèles (voir Figure 1). Les deux matériaux sont supposés être en équilibre thermodynamique local et caractérisés par les températures  $T$  et  $T + \delta T$ , respectivement, de telle sorte que  $\delta T/T \ll 1$ . L'expression de  $\Phi$  a été démontrée par plusieurs auteurs [7, 8, 11]. Comme la différence de température est toute petite, on peut linéariser  $\Phi$  et par conséquent introduire un coefficient de transfert radiatif de chaleur  $h_{rad}$ ,  $\Phi(T, d) = h_{rad}(T, d)\delta T$ . Selon la TEF,  $h_{rad}$  peut se mettre sous la forme :

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

Dans l'Eq. (1), la somme tient compte des deux polarisations S(TE) et P(TM),  $h_{prop}^{\alpha}$  et  $h_{evan}^{\alpha}$  représentent, respectivement les deux contributions propagative et évanescence,  $d$  désigne la distance de séparation entre les deux matériaux solides,  $r_{3m}^{\alpha}$  représente le coefficient de réflexion généralisé de Fresnel à l'interface entre le milieu  $m$  et le vide (milieu 3) pour une onde EM de polarisation  $\alpha=S, P$  et de vecteur d'onde  $K$  parallèle à la surface. Le vecteur d'onde  $\gamma_m = \sqrt{\epsilon_m \omega^2/c^2 - K^2}$  décrit la propagation à travers le milieu  $m$  et  $h^0(T, \omega)$  est la dérivée par rapport à la température de la luminance du corps noir (loi de Planck) :

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

Les coefficients de réflexion généralisés de Fresnel  $r_{3m}^\alpha$  sont donnés par :

$$r_{3m}^P = \frac{\gamma_3 - \varepsilon_3 \omega Z_P^m}{\gamma_3 + \varepsilon_3 \omega Z_P^m} \text{ and } r_{3m}^S = \frac{c^2 \gamma_3 Z_S^m - \omega}{c^2 \gamma_3 Z_S^m + \omega} \quad (3)$$

Dans ces expressions,  $Z_P^m$  et  $Z_S^m$  désignent les impédances de surface pour les deux polarisations  $P$  et  $S$ , respectivement. Ces impédances sont directement liées aux composantes longitudinale  $\varepsilon_l$  et transverse  $\varepsilon_t$  de la permittivité diélectrique. Elles sont données par les formules générales suivantes [11] :

$$Z_P^m = \frac{2i}{\pi\omega} \int_0^{+\infty} \frac{dq}{k^2} \left[ \frac{q^2}{\varepsilon_t(k, \omega) - (ck/\omega)^2} + \frac{K^2}{\varepsilon_l(k, \omega)} \right] \text{ and } Z_S^m = \frac{2i}{\pi\omega} \int_0^{+\infty} \frac{dq}{\varepsilon_t(k, \omega) - (ck/\omega)^2} \quad (4)$$

où  $k^2 = K^2 + q^2$ ,  $q$  étant la composante normale à la surface du vecteur d'onde de l'onde EM.

Le modèle nonlocal de la permittivité diélectrique que nous utilisons dans notre présente étude est celui proposé par Kliewer et Fuchs, au départ pour analyser la relation de dispersion des phonons optiques de surface dans un cristal ionique semi-infini [12]. Les expressions suggérées par Kliewer et Fuchs pour les composantes longitudinale  $\varepsilon_l$  et transverse  $\varepsilon_t$  de la permittivité diélectrique nonlocale sont données par :

$$\begin{cases} \varepsilon_l(k, \omega) \approx \varepsilon_l(q, \omega) = 1 + \frac{A-1}{1 - \Omega(\Omega + i\Gamma) + B[\cos(\pi q/q_B) - 1]} \\ \varepsilon_t(k, \omega) = 1 + \frac{A-1}{1 - \Omega(\Omega + i\Gamma)} \end{cases} \quad (5)$$

où  $\Omega = \omega/\omega_{TO}$ ,  $\omega_{TO}$  désigne la fréquence propre des phonons optiques transverses,  $\Gamma$  désigne le facteur d'amortissement,  $A$  et  $B$  sont deux constantes ajustables et  $q_B$  représente la limite de la première zone de Brillouin (PZB). La condition  $\varepsilon_l(q, \omega) = 0$  avec  $\Gamma=0$  permet d'obtenir la relation de dispersion des phonons optiques longitudinaux, qui se met sous la forme [12] :

$$\omega = \omega_{TO} \sqrt{A + B \left[ \cos\left(\pi \frac{q}{q_B}\right) - 1 \right]} \quad (6)$$

Comme on peut le voir dans le système d'équations [Eq. (5)], la composante transverse  $\varepsilon_t$  de la permittivité diélectrique est complètement locale, le calcul de l'impédance de surface de la polarisation  $S$  peut ainsi se faire facilement en utilisant le théorème des résidus, ce qui nous permet d'obtenir la formule locale du coefficient de réflexion de Fresnel pour cette polarisation [7, 8]:

$$r_{3m}^S = \frac{\gamma_3 - \gamma_m}{\gamma_3 + \gamma_m} \quad (7)$$

Seule la composante longitudinale  $\varepsilon_l$  de la permittivité diélectrique est nonlocale, en plus d'après Kliewer et Fuchs, l'intégration sur la composante normale du vecteur d'onde  $q$  doit être contenue à l'intérieur de la PZB. L'impédance de surface relative à la polarisation  $P$  se met ainsi sous la forme :

$$Z_P^m = \frac{2i}{\pi\omega} \int_0^{+\infty} \frac{dq}{k^2} \frac{q^2}{\varepsilon_l(k, \omega) - (ck/\omega)^2} + \frac{2i}{\pi\omega} \int_0^{q_B} \frac{dq}{k^2} \frac{K^2}{\varepsilon_l(k, \omega)} \quad (8)$$

Afin de tenir compte des effets de retard, le calcul de  $h_{evan}^\alpha$  se divise en deux parties suivant la valeur de la composante parallèle  $K$  du vecteur d'onde par rapport à  $\omega_{TO}/c$ . Quand  $K < \omega_{TO}/c$ , les effets de retard sont importants et  $Z_p^m$  se calcule avec l'Eq. (8). Dans le cas contraire où  $K > \omega_{TO}/c$ , les effets de retard deviennent négligeables et  $Z_p^m$  peut ainsi être simplifié en utilisant le fait que [12]:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dq}{k^2 \varepsilon_l(k, \omega)} = -\frac{\pi}{K \varepsilon_l} \quad (9)$$

où  $\varepsilon_l$  désigne la permittivité diélectrique du milieu inactif qui dans notre cas est le vide, donc  $\varepsilon_l=1$ . L'expression de  $Z_p^m$  devient alors :

$$Z_p^m = \frac{\gamma_m}{\omega \varepsilon_l} - \frac{iK}{\omega \varepsilon_l} - \frac{iK}{\omega \varepsilon_l} \quad (10)$$

### 3. Résultats et discussion

Afin de pouvoir appliquer le modèle de la permittivité diélectrique cité ci-dessus, il faut d'abord déterminer les constantes  $A$  et  $B$ . Celles-ci sont déterminées en fittant les données expérimentales de la relation de dispersion des phonons optiques longitudinaux du 6H-SiC [13]. On trouve les valeurs suivantes  $A=1.522$  et  $B=0.181$ .

La figure 2 représente la variation du coefficient de transfert radiatif en fonction de la distance de séparation entre deux matériaux plans semi-infinis de carbure de silicium (6H-SiC). Afin d'interpréter le comportement du coefficient de transfert radiatif total, quatre contributions à ce coefficient de transfert ont été représentées. D'une part deux contributions classiques : les deux contributions des ondes propagatives en polarisation S et P. D'autre part, les deux contributions évanescentes dues au transfert par effet tunnel entre les deux matériaux, également pour les deux états de polarisation.

Jusqu'à une distance d'environ 1 nm, le coefficient de transfert radiatif calculé ici est identique à celui qui est calculé avec un modèle local pour la constante diélectrique. Rappelons ici le comportement des différents termes dans ce cas. A grande distance, le transfert est dominé par les termes propagatifs. Le coefficient de transfert radiatif est un peu inférieur à la valeur  $4\sigma T^3$  [7, 8]. Ceci est dû au fait que le SiC est très absorbant sur une large gamme spectrale mis à part autour de 10.6 microns où il est réfléchissant. On remarque aussi que 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). A courte distance, c'est-à-dire à des distances plus petites que la longueur d'onde thermique, le terme exponentielle dans le terme d'interférence au dénominateur de l'expression (1) vaut 1. Les contributions des deux polarisations sont très proches là encore de  $4\sigma T^3$ .

Les contributions évanescentes ont un comportement très différent. Elles dépendent du produit des parties imaginaires des coefficients de réflexion et d'un terme d'interférence dans la cavité formée par les matériaux.

$$\frac{4\text{Im}(r_{31}^\alpha)\text{Im}(r_{32}^\alpha)e^{-2\gamma_3''d}}{|1 - r_{31}^\alpha r_{32}^\alpha e^{-2\gamma_3''d}|^2}$$

Les ondes évanescentes sont les ondes ayant une grande fréquence spatiale ( $K \gg \frac{\omega}{c}$  dans Eq. (1)). Lorsque la distance à l'interface est plus grande que la longueur d'onde, cette

contribution est rendue négligeable par le terme  $e^{-2\gamma_3'' d}$ . En effet, ces ondes ont un vecteur d'onde parallèle à l'interface imaginaire pur et décroissent exponentiellement lorsque l'on s'éloigne de l'interface. Cependant, la densité de modes électromagnétiques près de l'interface et donc la quantité d'énergie près de l'interface pouvant être échangée dépend de la partie imaginaire du coefficient de réflexion. On comprend donc que plus la partie imaginaire des coefficients de réflexion est grande, plus la contribution des ondes évanescentes sera importante. Néanmoins, les coefficients de réflexion à l'interface sont différents en polarisation S et P. En polarisation S, le coefficient de réflexion tend vers 0 pour les grand  $K$   $r^s \sim (\varepsilon - 1) / [\frac{4K^2}{k_0^2}]$ . Lorsque l'on s'approche de l'interface, de plus en plus de modes (de grand  $K$ ) contribuent au transfert mais le coefficient de réflexion tendant vers 0, la contribution en polarisation S sature. Ce terme de polarisation S peut être très important et dominant dans le cas des métaux [11]. Il est ici plus faible en raison de la plus faible conductivité électrique du SiC mais est tout de même dominant pour des distances de séparation de l'ordre du micron.

En polarisation P et dans un milieu local le coefficient de réflexion tend vers  $(\varepsilon - 1) / (\varepsilon + 1)$  et prend donc une valeur finie non nulle. A mesure que la distance entre les milieux est réduite, le nombre de modes qui contribuent au transfert augmente et est proportionnel à une fréquence donnée à la partie imaginaire du coefficient de réflexion. Le nombre de modes mis en jeu croissant comme l'inverse du carré de la distance, le transfert croit dans les mêmes proportions. Comme il a déjà été dit, cette divergence du flux n'est pas physique aux courtes distances et c'est pourquoi le modèle non local introduit plus tôt a été utilisé. Comme la courbe sur la Figure 2 l'indique, la divergence du flux disparaît avec le modèle non local lorsque la distance entre les matériaux est de l'ordre du nanomètre. Cette distance est du même ordre de grandeur de la maille du réseau constituant le SiC. Tant que la longueur d'onde spatiale de l'onde plane considérée ( $2\pi/K$ ) est grande devant la maille du réseau, l'onde plane est décrite spatialement sur une distance plus grande que la maille du réseau. La réponse optique du milieu peut alors être considérée comme continue et locale. Lorsque la longueur d'onde spatiale approche de la maille du réseau, cette onde plane est sensible à la structure du réseau. Donc pour des grands  $K$ , c'est-à-dire plus grands que  $q_0$ , la réponse optique dépend de  $K$  et est donc non locale. On montre alors que la partie imaginaire du coefficient de réflexion en polarisation P tend vers 0. D'un point de vue microscopique, si l'onde plane considérée varie spatialement sur une échelle plus petite qu'un atome, le milieu devient transparent pour elle. On peut faire l'analogie avec l'exemple de la grille posée sur la façade d'un four à micro-onde qui est globalement transparente dans le visible quand la variation spatiale des ondes est plus petite que la taille des trous alors qu'elle est réfléchissante dans les micro-onde lorsque les variations spatiales sont plus grandes que la taille des trous.

## 4. Conclusion

Dans ce travail, nous avons montré que par l'application d'un modèle non local de la permittivité diélectrique, le flux radiatif entre deux matériaux plans diélectriques du SiC sature à une distance  $d$  de séparation de l'ordre de la constante de réseau, remédiant ainsi à la divergence vers l'infini en loi  $1/d^2$  que l'on trouve avec un modèle local.

Nous avons également montré que la contribution évanescente de la polarisation S au flux de chaleur n'a été presque pas affectée par la non-localité et elle sature dans les deux cas local et nonlocal, alors que la contribution évanescente de la polarisation P atteint la saturation en raison de cette non-localité qui devient dominante pour des grandes valeurs du vecteur d'onde parallèle  $K$  et de petites distances  $d$  (proche de ou inférieure à la constante de réseau).

## Références

- [1] S. Basu et al; *Int. J. Energy Res.* 33 (2009), 1203–1232.
- [2] B. Guha et al ; *Nano Lett.* 12 (2012), 4546–4550.
- [3] F. Incropera et al; *Fundamentals of Heat and Mass Transfer* 7 (2011).
- [4] E. G. Cravalho et al; *J. Heat Transfer* 89 (1967), 351.
- [5] S. M. Rytov et al; *Principles of Statistical Radiophysics* “Springer, New York” (1989), Vol. 3.
- [6] D. Polder & M. Van Hove, *Phys. Rev. B* 4 (1971), 3303-3314.
- [7] K. Joulain et al; *Surf. Sci. Rep.* 57(2005) ,59–112.
- [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] A. Kittel, et al; *PRL* 95 (2005), 224301.
- [11] P. Chapuis et al; *Phys. Rev. B* 77 (2008), 035431.
- [12] K. Klieber & R. Fuchs; *Adv. Chem. Phys.* 27 (1974), 449– 459.
- [13] S. Nowak., *Proc. SPIE* 4412 (2001),180-186.

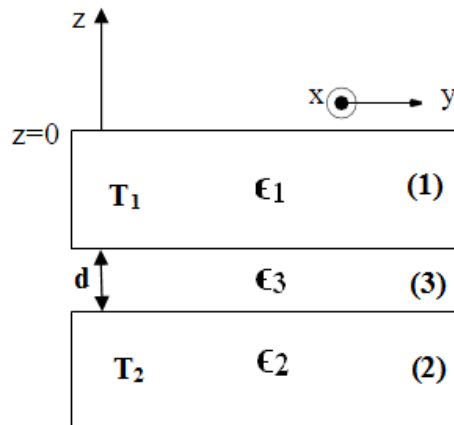


Figure 1 : Deux milieux plans semi-infinis séparés par une distance  $d$ .

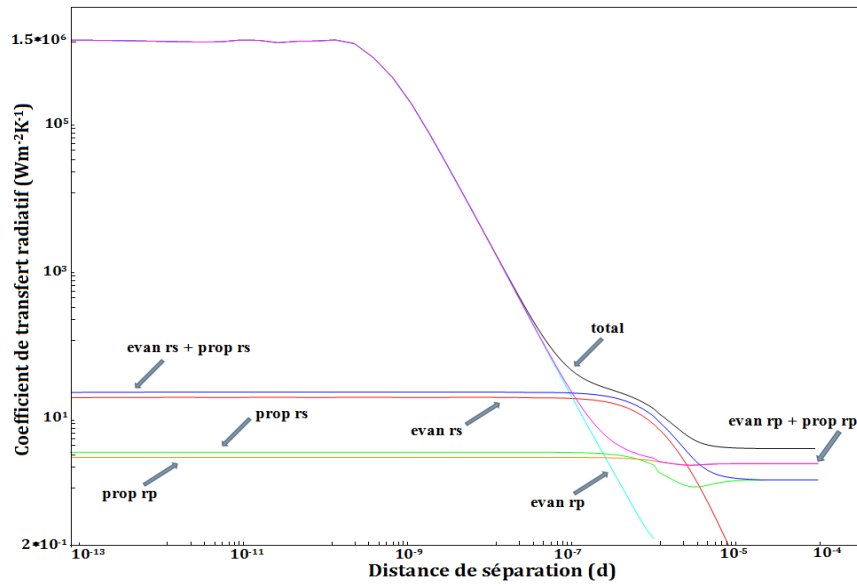


Figure 2 : Variation du coefficient de transfert radiatif (contribution des ondes évanescentes et propagatives) entre deux milieux plans semi-infinis de Carbure de Silicium.