RAYONNEMENT THERMIQUE DES METAUX MICRORUGUEUX OU DISPERSES

BERNARD PY

Laboratoire de Mécanique, École Nationale Supérieure d'Electricité et de Mécanique, Nancy

(Reçu le 9 mai 1967; le manuscript révisé reçu le 1 juin 1967)

Résumé—On a étudié l'accroissement du rayonnement thermique de l'aluminium et du titane (par comparaison au cas des métaux polis) lorsque leur surface comporte de nombreuses anfractuosités de dimension inférieure aux longueurs d'onde du rayonnement considéré. Dans le cas de couches minces d'alumine déposée sur des fils ou des rubans d'aluminium, on observe également un accroissement de l'énergie rayonnée lorsque le revêtement renferme des microparticules de platine. Les théories sur la constante diélectrique des milieux hétérogènes permettent d'expliquer ces phénomènes. Dans le cas des métaux microrugueux, il apparait, si l'on tient compte d'un effet de peau, que l'augmentation du rayonnement thermique dépende uniquement de la fraction de surface apparente des anfractuosités. Ces résultats dégagent la différence entre le phénomène de rayonnement et celui d'accommodation thermique du point de vue de l'influence de la rugosité.

NOMENCLATURE

- A, facteur de dépolarisation d'une particule ellipsoïdale dans la direction de l'axe i:
- diamètre de'l âme métallique [cm]; d,
- diamètre total [cm]; D.
- épaisseur de l'âme métallique [cm]; e,
- épaisseur totale [cm]; Ε,
- *F*. rapport de la surface réelle des anfractuosités sur leur surface apparente:
- nombre imaginaire unité; i,
- K_{r} constantes:
- indice complexe de réfraction, n(1 + ik); ñ,
- indice réel de réfraction : n.
- nk. coefficient d'extinction;
- surface réelle totale $[m^2]$; S_1 ,
- S_2 , surface géométrique apparente $[m^2]$;
- température [°C]; t.
- température [°K]; Τ,
- coefficient d'accommodation; α,
- hémisphérique facteur ε,, monochromatique d'émission;
- facteur hémisphérique total d'émission ; E ..., permittivité;
- ε,
- ε*****. permittivité fictive d'un milieu supposé continu entourant une particule;

- constante diélectrique du vide $[10^{-9}/36]$ Έ, $s \Omega^{-1} m^{-1}$];
- φ, fraction volumique de la phase microdispersée;
- résistivité électrique; ρ,
- conductivité électrique. σ,

Indices

- '. métal rugueux :
- phase continue: 0.
- phase dispersée: i.
- m. milieu hétérogène.

INTRODUCTION

LE TRANSFERT de chaleur par rayonnement à la surface des métaux a fait l'objet d'études déjà anciennes. Davisson et Weeks [1] ont calculé le facteur hémisphérique total d'émission d'un métal supposé parfaitement lisse, en fonction de sa résistivité électrique et température absolue. Cependant la loi universelle qu'ils proposent n'est pas vérifiée par l'expérience. La théorie a été améliorée [2] pour les températures inférieures à 800°C, en tenant compte de l'inertie des électrons libres. Celles-ci ne sont cependant cependant applicables qu'à quelques métaux

particulièrement faciles à polir et ne rendent pas compte des valeurs expérimentales déterminées avec des échantillons quelconques.

Il est généralement admis que les facteurs d'émission augmentent avec la rugosité, mais l'influence de celle-ci n'a pu être définie avec précision en raison de la diversité des états de surface et de la forme infiniment variée des aspérités.

Dans une étude comparée du rayonnement et de l'accommodation thermique, Paulmier [3] a proposé deux expressions qui relient ces grandeurs à la rugosité. Dans les deux cas, le calcul repose sur l'hypothèse respective que les longueurs d'onde du rayonnement thermique ou les molécules sont petites devant les dimensions des cavités. Dans ces conditions, le facteur d'émission d'un métal rugueux s'exprime par

$$\varepsilon'_{\rho_T} = \frac{\varepsilon_{\rho_T}}{\varepsilon_{\rho_T} + \frac{S_1}{S_2}(1 - \varepsilon_{\rho_T})}.$$
 (1)

Pour les coefficients d'accommodation, la similitude des hypothèses et des lois conduit à une relation semblable:

$$\alpha' = \frac{\alpha}{\alpha + \frac{S_1}{S_2}(1 - \alpha)}.$$
 (2)

Ces deux expressions conduisent à des résultats divergents lorsque l'examen optique des surfaces met en évidence une échelle de rugosité inférieure aux longueurs d'onde du rayonnement thermique. En effet il n'est plus possible dans ce cas, de considérer les anfractuosités comme autant de petits corps noirs qui augmentent l'échange thermique global des surfaces.

Nous nous sommes attachés principalement à étudier cette influence de la très fine rugosité des métaux sur leur facteur d'émission dans les deux où le métal forme une phase continue ou dispersée.

TECHNIQUE EXPÉRIMENTALE [2]

La cellule de mesure est constituée par un tube

vertical en verre, fermé à ses extrémités et thermostaté à $20 \pm 0,1$ degC. Elle comporte quatre passages de courant identiques, isolés et étanches, qui supportent deux filaments métalliques minces de même nature. Ceux-ci possèdent même section et état du surface, mais des longueurs différentes et suffisamment grandes pour que leur zone centrale soit à température constante dans les conditions de l'expérience. Ainsi, par la différence des grandeurs mesurées sur ces filaments, on élimine les causes d'erreur dues aux pertes thermiques aux extrémités. Par cette méthode classique les mesures se rapportent alors à une partie isotherme du conducteur.

Une alimentation stabilisée en tension permet de chauffer les filaments par effet Joule. La puissance dissipée est déterminée à 0,1 pour cent près à partir des mesures de la chute de potentiel aux bornes des filaments et d'une résistance étalon placée dans le circuit. Un étalonnage préalable de la résistivité des matériaux utilisés permet de connaitre leur température à \pm 0,5 degC près. La pression résiduelle des gaz dans la cellule est évaluée à l'aide d'une jauge à ionisation. Les vides obtenus, 5.10⁻⁷ torr ou mieux, autorisent à négliger la conduction moléculaire devant le rayonnement thermique.

RAYONNEMENT DES SURFACES MICRORUGUEUSES

La théorie de Davisson et Weeks prévoit que l'évolution du facteur hémisphérique total d'émission d'un métal en fonction de la température est, en première approximation, linéaire. On constate effectivement ce phénomène sur les courbes expérimentales de la Fig. 1 qui concernent deux métaux polis électrolytiquement. Comme le montre cette même figure, on observe une évolution analogue sur ces métaux lorsqu'ils n'ont pas été polis. L'examen au microscope permet de constater sur chacun d'entre eux (Figs. 2–4) l'existence de très nombreuses cavités de dimensions moyennes égales ou inférieures au micron.

Ces résultats sont à rapprocher de ceux



FIG. 2. Surface de l'aluminium ruguex. Observation en interferométrie.



FIG. 3. Surface de l'aluminium rugueux. Observation en contraste de phase.



FIG. 4. Surface du titane rugueux. Observation en contraste de phase.



publiés par Paulmier [3] qui rapporte l'évolution des facteurs d'émission de plusieurs fils de nickel possédant des rugosités différentes (Fig. 5). L'examen optique montre également dans ce cas que les dimensions moyennes des anfractuosités sont inférieures aux longueurs d'onde du rayonnement thermique considéré.



FIG. 5. Influence de la microrugosité.

On peut noter les points suivants: le facteur d'émission des métaux rugueux varie presque linéairement avec la température, et le rapport

reste à peu près constant ; une échelle de rugosité

inférieure aux longueurs d'onde du rayonnement thermique, telle que nous l'observons sur l'aluminium ou le titane, influe profondément sur l'énergie toale émise ou réfléchie par le métal, bien que les aspérités soient trop petites pour entrainer une diffusion sensible des ondes électromagnétiques.

INTERPRETATION

La principale difficulté que l'on rencontre pour calculer l'émittance d'un métal poli est de pouvoir évaluer sa constante diélectrique. Dans le cas d'un métal microrugueux, on serait en droit d'effectuer un calcul identique, sous réserve de pouvoir exprimer la constante diélectrique du corps rugueux. Pour ce faire, celui-ci sera considéré comme un milieu hétérogène formé par l'interpénétration de deux phases au voisinage de leur interface.

Afin d'effectuer quelques hypothèses simples concernant la forme de la rugosité, il est nécessaire de préciser l'action d'un rayonnement électromagnétique sur un métal. Dans les hypothèses de Davisson et Weeks, on peut noter que le rayonnement thermique prend naissance dans une couche de 100 Å d'épaisseur. Nous avons calculé dans des hypothèses plus complexes [2] que les trois quarts de l'énergie émise provenait d'une couche superficielle de 200 Å. Ceci suggère que, pour une échelle de rugosité inférieure à 200 Å, on peut considérer le rayonnement comme un phénomène volumique, la fraction volumique occupée par les cavités variant avec la profondeur considérée. Par contre, lorsque l'échelle de rugosité est grande devant cette épaisseur efficace (Fig. 6), le rayonnement peut être considéré comme un



FIG. 6. Schéma d'une cavité.

phénomène de surface. Dans ce cas, la fraction volumique de métal occupée par les pores est constante sur toute l'épaisseur intéressant le rayonnement thermique, et, par conséquent, égale à la fraction ϕ de surface apparente des anfractuosités. Celles-ci peuvent être considérées comme des cylindres indéfinis dont l'axe serait perpendiculaire à la surface du métal.

Un second point important est de noter que le vecteur champ électrique est normal à la direction de propagation d'une onde électromagnétique qui se propage dans un milieu isotrope [4]. En raison de l'indice de réfraction très élevé des métaux, les ondes se propagent sous une incidence voisine de la normale à la surface du métal, et le vecteur champ électrique est donc parallèle à cette surface ou selon notre modèle perpendiculaire à l'axe des pores.

Il en résulte que la permittivité de la surface métallique doit être calculée comme celle d'un milieu dans lequel le métal constitue la phase continue, la phase dispersée étant formée de cylindres indéfinis d'axes perpendiculaires au champ électrique. Nous pouvons distinguer le cas où la section apparente des pores est de forme circulaire. La permittivité d'un tel milieu peut être déduite des relations de de Loor [5] appliquées à des particules ellipsoïdales de révolution possédant un axe très grand orienté perpendiculairement au champ électrique.

$$\varepsilon_{m} - \varepsilon_{o} = \phi(\varepsilon_{i} - \varepsilon_{o}) \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{j=2} \frac{1}{1 + (\varepsilon_{i}/\varepsilon^{*} - 1)A_{j}}$$

avec $A_{1} = A_{2} = \frac{1}{2}$.

De Loor [5] a établi que ε^* est toujours compris entre ε_m et ε_o . Dans le cas d'un métal rugueux, la relation se simplifie. En effet, ε_o et ε_m sont très supérieurs à ε_i , de telle sorte que l'on puisse négliger $\varepsilon_i/\varepsilon^*$ devant l'unité; il vient alors:

$$\varepsilon_m = \varepsilon_o (1 - 2\phi).$$

La relation de Rayleigh [5] établie directement pour le cas précité permet une précision supérieure. On peut la mettre sous la forme:

$$\varepsilon_m = \frac{1-\phi}{1+\phi} \varepsilon_o.$$

Dans le cas de pores dont la surface apparente est de forme très allongée, la formule de de Loor reste applicable en posant $A_1 = 0, A_2 = 1$. Ceci conduit à une valeur de la permittivité telle que

$$\varepsilon_m = \varepsilon_o \left(1 - \frac{3}{2}\phi\right).$$

Dans les hypothèses de Davisson et Weeks, la permittivité du métal compact s'exprime sous la forme

$$\overline{\varepsilon} = \varepsilon - \frac{\sigma}{\omega(\overline{\varepsilon})}i \quad \text{avec} \quad \frac{\sigma}{\omega(\overline{\varepsilon})} \gg \varepsilon$$

Pour tenir compte de la microrugosité, dans le cas le plus général où celle-ci peut être assimilée à des trous de forme circulaire, il suffit de faire intervenir une conductivité

$$\sigma' = \frac{1-\phi}{1+\phi}\sigma$$

ou une résistivité

$$\rho' = \frac{1+\phi}{1-\phi}\rho.$$

 σ' ou ρ' pouvant représenter la "conductivité ou résistivité électrique de la surface microrugueuse".

L'évolution du facteur hémisphérique total d'émission étant de la forme $\varepsilon_{\rho_T} = K(\rho \times T)^{\frac{1}{2}}$, le métal rugueux possédera un facteur d'émission tel que:

$$\frac{\varepsilon'_{\rho_T}}{\varepsilon_{\rho_T}} = \left(\frac{1+\phi}{1-\phi}\right)^{\frac{1}{2}} \tag{3}$$

pour des trous de surface apparente circulaire, ou

$$\frac{\varepsilon'_{\rho_T}}{\varepsilon_{\rho_T}} = (1 - \frac{3}{2}\phi)^{-\frac{1}{2}} \tag{4}$$

pour des trous de surface apparente très allongée. Ce rapport est fonction de la seule variable ϕ . Il traduit l'augmentation de l'énergie émise par le métal rugueux ainsi que l'affinité des courbes représentant

$$\frac{\varepsilon_{\rho_T}'}{\varepsilon_{\rho_T}}$$

en fonction de la température, ce que l'expérimentation vérifie bien.

On peut ainsi expliquer l'évolution différente en fonction de la rugosité, de l'accommodation et du rayonnement thermique, tel que l'a observé Paulmier [3]. Nous rapportons sur le tableau 1 les valeurs de S_1/S_2 calculées par cet

 Tableau 1. Influence comparée de l'état de surface de 4
 énchantillons de nickel sur le rayonnement et l'accommodation

 thermiaue
 thermiaue

-	ε΄ _ρ τ 325°C	$\left(\frac{S_1}{S_2}\right)$	α' He	$\left(\frac{S_1}{S_2}\right)_{\rm He}$	α'A	$\left(\frac{S_1}{S_2}\right)_A$
1	0,100	1,05	0,215	1,06	0,80	1,05
2	0,104	1,09	0,265	1,37	0,84	1,36
3	0,106	1,11	0,290	1,54	0,86	1,60
4	0,133	1,47	0,380	2,35	0,90	2,36

auteur d'après les relations (1) et (2), à partir des mesures concernant le facteur d'émission et les coefficients d'accommodation de l'hélium et de l'argon sur quatre fils de nickel. Il est intéressant de noter que les valeurs de S_1/S_2 obtenues dans les deux cas d'accommodation sont très voisines tandis qu'elles s'écartent des valeurs plus faibles déterminées à partir des mesures de rayonnement.

Si l'on admet que l'accommodation dépende de la surface réelle du métal (relation 2) et le rayonnement de la surface apparente des anfractuosités (relations 3 ou 4) on relie immédiatement à ces grandeurs le rapport F de la surface réelle des cavités sur leur surface apparente

$$F = \frac{1}{\phi} \left(\frac{S_1}{S_2} + \phi - 1 \right).$$

Dans le cas d'anfractuosités de forme bien définie, par exemple cubique (F = 5) ou hémisphérique (F = 2), on obtient une relation directe entre ϕ et S_1/S_2 telle que l'on puisse expliquer les variations relatives de ces deux phénomènes en fonction du nombre et de l'importance des cavités.

RAYONNEMENT THERMIQUE DES DISPERSIONS METALLIQUES

On peut considérer le cas particulier où la microrugosité du métal devient tellement importante que les particules métalliques doivent être considérées comme isolées électriquement les unes des autres. Ce cas se présente fréquemment lorsqu'on effectue des dépôts électrolytiques ou chimiques de noirs métalliques.

Nous avons déterminé, en fonction de la température, l'évolution du facteur hémisphérique total d'émission de fils (Fig. 7) et de rubans (Fig. 8) d'aluminium oxydés anodiquement.



FIG. 7. Influence du noircissement sur le facteur d'émission des fils oxydés.



FIG. 8. Influence du noircissement sur le facteur d'émission des rubans oxydés.

Plusieurs échantillons ont été noircis en développant photochimiquement des halogénures d'argent dispersés dans les pores de l'alumine, et en inversant le métal ainsi obtenu dans un bain de virage au platine selon des procédés photographiques courants [6]. Un revêtement particulier, comportant une fraction volumique importante de noir de platine dispersé dans du phosphate d'aluminium a pu également être étudié (Fig. 8).

Bien que l'on observe, pour des épaisseurs de revêtement comparables, une différence dans le comportement des fils et des rubans, différence explicable simultanément par la géométrie des échantillons ainsi que par les dislocations de l'alumine émanée sur les fils, on constate que les facteurs d'émission des métaux oxydés et noircis photochimiquement sont supérieurs à ceux des métaux simplement oxydés. On observe également que la décroissance avec la température du facteur d'émission des métaux oxydés, explicable par la transparence de l'alumine aux courtes longueurs d'onde, existe toujours dans le cas où l'oxyde contient des particules de platine.

INTERPRETATION

Comme dans le cas des métaux microrugueux, il parait possible d'expliquer ces résultats à partir des théories établissant la constante diélectrique des milieux hétérogènes. Dans ce cas, cependant, nous noterons trois principales différences.

- 1. Le métal constitue la phase dispersée tandis que le composé non conducteur forme la phase continue.
- 2. Le milieu hétérogène doit être considéré comme tridimensionnel puisque l'on ne peut plus faire l'approximation que la profondeur de pénétration du rayonnement est petite devant la taille des particules.
- 3. La permittivité du milieu continu étant faible, les valeurs majorées et minorées de la constante diélectrique ne coïncident plus.

La relation de de Loor peut s'écrire sous la forme:

$$\varepsilon_m - \varepsilon_o = \phi(\varepsilon_i - \varepsilon_o) \frac{1}{3} \sum_{j=1}^{j=3} \frac{1}{1 + \left(\frac{\varepsilon_i}{\varepsilon^*} - 1\right) A_j}$$

avec

$$A_1 = A_2 = A_3 = \frac{1}{3}$$

pour des particules sphériques,

 $A_1 = 1, A_2 = A_3 = 0$ pour des particules en forme de disque

$$A_1 = 0, A_2 = A_3 = \frac{1}{2}$$

pour des particules en forme d'aiguille.

Les permittivités étant complexes, cette relation devrait être développée en séparant les parties réelles des parties imaginaires. Nous supposerons plus simplement que $|\varepsilon_i|$ est très supérieur à $|\varepsilon_o|$ et que ε_i est essentiellement imaginaire, tandis que ε_o est essentiellement réel. Pour des particules sphériques, tant que la fraction volumique du métal est faible, on obtient l'expression:

$$\varepsilon_m = \varepsilon_o \left(1 + 3\phi - K_1 \phi \frac{\varepsilon_o}{\varepsilon_i} \right)$$

avec

$$3 < K_1 < 9.$$

On en déduit les valeurs respectives de la partie réelle et imaginaire de l'indice complexe de réfraction du matériau hétérogène :

$$n = n_o \left(1 + \frac{3}{2}\phi\right)$$

$$nk = n_o k_o \left(1 + \frac{3}{2}\phi\right) + K_2 \phi n_o \frac{\left|\varepsilon_o\right|}{\left|\varepsilon_i\right|}$$
avec 1,5 < K₂ < 4,5.

Les courbes reportées sur la Fig. 9 permettent de relier ces grandeurs aux valeurs maximum du facteur monochromatique hémisphérique d'émission qu'il est possible d'obtenir. Ces valeurs ont été calculées numériquement sur ordinateur, sans faire d'hypothèses simplificatrices [2]. Une échelle complémentaire graduée en fonction de la longueur d'onde indique l'épaisseur de matière nécessaire pour que ces résultats soient atteints à 1 pour cent près. A une épaisseur moitié moindre correspondrait un facteur d'émission inférieur de 10 pour cent à la valeur maximum indiquée.



FIG. 9. Facteur monochromatique hémisphérique d'émission en fonction de l'indice complexe de réfraction.

On constate que, si l'indice réel du milieu hétérogène est accru, ce qui diminue très légèrement le facteur d'émission maximum par rapport à celui affairant au seul milieu continu, son coefficient d'extinction supérieur lui permet d'atteindre une émittance élevée sur une épaisseur plus faible. Le raisonnement s'applique également lorsque le milieu continu n'est pas absorbant (par exemple pour le vide d'indice complexe $\bar{n} = 1$). Le coefficient d'extinction possède alors une valeur non nulle

$$\left(+K_2\phi n_o \frac{|\varepsilon_o|}{|\varepsilon_i|}\right),$$

assez faible pour que le facteur d'émission

maximum soit élevé, mais suffisante pour que le milieu considéré puisse émettre ou absorber le rayonnement sur une distance finie.

Il n'apparait pas possible cependant d'espérer une corrélation quantitative entre les résultats de ce calcul et nos expériences si on admet pour ε_i les valeurs théoriques ou expérimentales de la permittivité du platine massif. Il faudrait dans ce cas tenir compte de la structure fine des particules dispersées pour calculer leur permettivité et expliquer quantitativement l'augmentation du rayonnement thermique observé dans les expériences.

AVERTISSEMENT

Nous exprimons nos remerciements à Monsieur le Professeur J. Gosse qui est à l'origine de ce travail et à Monsieur le Professeur E. A. Brun pour les remarques et les encouragements qu'il nous a apportés.

BIBLIOGRAPHIE

- 1. C. DAVISSON et J. R. WEEKS, The relation between the total thermal emissive power of a metal and its electrical resistivity, J. Opt. Soc. Am. 8, 582 (1924).
- B. Py, Sur le rayonnement thermique des métaux, Thèse, Nancy, C.N.R.S. AO 1115 (1967). Rayonnement thermique des métaux polis, *Revue Gén. Thermique* 6(64), 333 (1967).
- 3. D. PAULMIER, Étude comparée de l'influence de l'état de surface d'un métal sur le rayonnement et l'accommodation thermique, Thèse, Nancy, (1963) et Publ. Sci. Techn. Min. Air, Paris (1965).
- 4. P. JACQUINOT, Optique Électromagnétique des Milieux Isotropes, Tome 1, Ed. C. HERMANT. Paris (1964).
- 5. G. P. DE LOOR, Dielectric properties of heterogeneous mixtures, Thesis, Leiden, (1956).
- 6. P. GLAFKIDES, La Chimie Photographique, Ed. P. MONTEL. Paris (1956).

Abstract—The increase of thermal radiation of aluminium and titanium with surfaces having a great number of anfractuosity of dimensions inferior to the wave length of radiation has been studied (by comparison with polished metals). We observe an increase in the energy radiated when micro particles of platinum are embedded in a thin film of alumina on wires or strips of aluminium. The theory of the dielectric constants of heterogeneous medium allows the explanation of this phenomenon. It appears if we take into account the skin effect, that in the case of metals of micro-roughness the increase of thermal radiation depends only on the fraction of the apparent surface of the anfractuosity. The results show the difference between the phenomenon of radiation and that of thermal accommodation from the point of view of effect of roughness.

Zusammenfassung—Die Zunahme der Temperaturstrahlung von Aluminium- und Titanoberflächen mit Unebenheiten, deren Grösse unterhalb der Wellenlänge der Strahlung liegt, wurde untersucht (durch Vergleich mit polierten Metallen). Wir beobachteten eine Zunahme der abgestrahlten Energie für den

BERNARD PY

Fall, dass Mikropartikel aus Platin in einen dünnen Film aus Aluminium auf Drähten oder Bändern aus Aluminium eingebettet wurden. Die Theorie der dielektrischen Konstanten heterogener Medien erlaubt die Erklärung dieses Phänomens. Bei Berücksichtigung des Oberflächeneffekts erscheint es, dass im Fall von Metallen mit Mikrorauhigkeiten die Zunahme der thermischen Strahlung nur abhängt vom Anteil der scheinbaren Oberfläche an der Rauhigkeit. Die Ergebnisse zeigen den Unterschied zwischen dem Phänomen der Strahlung und dem der thermischen Angleichung vom Gesichtspunkt des Einflusses der Rauhigkeit.

Аннотация—В сравнении с отшлифованными металлами исследовалось увелечение теплового излучения алюминия и титана с большим числом неровностей на поверхностях, размеры которых меньше длины волны излучения. Наблюдается увелечение излученной энергии, когда платиновые микрочастицы заделаны в тонкую пленку окиси алюминия на алюминиевых проволочках или полосках. Теория диэлектрических постоянных гетерогенной среды позволяет объяснить это явление. С учетом поверхностного эффекта оказывается, что для случая металлов с микрошероховатостью увелечение теплового излучения зависит только от доли кажущейся поверхности неровностей. Из результатов вытекает разница между излучением и тепловой аккомодацией с точки зрения влияния шероховатости.