

THESE DE DOCTORAT DE

NANTES UNIVERSITE

ECOLE DOCTORALE N° 596

Matière, Molécules, Matériaux et Géosciences

Spécialité : Chimie Physique, Chimie Théorique

Par

Tanguy FERRE

Modélisation et prédiction des propriétés radiatives des matériaux : ouverture à la simulation de l'émissivité

Thèse présentée et soutenue à Nantes, le 07 novembre 2025

Unité de recherche : Institut des Matériaux de Nantes Jean Rouxel (IMN), UMR-CNRS 6052

Rapporteurs avant soutenance :

Aurélié PERRIER, Professeure des universités, LIED, CNRS, Paris

Valentina GIORDANO, Chargée de recherche, ILM, CNRS, Lyon

Composition du Jury :

Président : (à préciser le jour de la soutenance)

Examineurs :

Chris EWELS, Directeur de recherche, IMN, CNRS, Nantes

José ORDONEZ, Chargé de recherche, INSP, CNRS, Paris

Directeur de thèse : **Camille LATOUCHE**, Maître de conférences, IMN, CNRS, Nantes

Co-direction de thèse : **Giorgia FUGALLO**, Chargée de recherche, LPENS, CNRS, Paris

Invités :

Stéphane JOBIC, Directeur de recherche, IMN, CNRS, Nantes

Steven LE CORRE, Professeur des universités, LTEN, CNRS, Nantes

Titre : Modélisation et prédiction des propriétés radiatives des matériaux : ouverture à la simulation de l'émissivité

Mots clés : DFT, Raman, Infrarouge, simulations *ab initio*

Résumé : Au cours des dernières années, les développements des propriétés opto-électroniques dans les domaines de l'UV et du visible ont pu être réalisés grâce à la synergie entre expériences et simulations. Toutefois, les propriétés radiatives dans le domaine de l'infrarouge restent peu traitées à l'aide de méthodes *ab initio*, malgré leur importance pour des applications telles que la conversion et production d'énergie, ou bien la gestion thermique. Le développement d'une méthode de calcul a été établi avec les chalcogénures du groupe III GaS et GaSe en tant qu'étude de cas. Ces semi-conducteurs en couches sont typiques des matériaux de type van der Waals, où l'anisotropie et la dimensionnalité du matériau influencent fortement les propriétés radiatives et vibrationnelles.

A l'aide de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT), une étude comparative de fonctionnelles a été réalisée avec l'utilisation d'ondes planes (OP) ou d'orbitales localisées (OL), démontrant la capacité des OL en tant qu'alternative aux OP. Cette approche a permis de reproduire fidèlement les signatures Raman dans le cadre de l'approximation harmonique. Pour aller plus loin, les contributions anharmoniques ont été calculées afin d'évaluer les interactions phonon-phonon et de simuler les propriétés optiques dans l'infrarouge telles que la réflectance, la transmittance, ou l'émissivité, en accord avec les observations expérimentales et permettant de réduire le fossé actuel entre les méthodes *ab initio* et les propriétés radiatives dans l'infrarouge.

Title : Modeling and predicting the radiative properties of materials : opening up to the simulation of emissivity

Keywords : DFT, Raman, Infrared, simulations *ab initio*

Abstract : In recent years, the study of opto-electronic properties in the visible and UV spectral ranges have benefited from the synergy between simulations and experiments. However, the radiative properties in the infrared remain poorly addressed to this day by *ab initio* methods despite their importance for energy production and conversion, as well as thermal management applications. The development of a computational framework has been established with group-III chalcogenides GaS and GaSe as case studies. These layered semi-conductor compounds are representative of van der Waals materials where both structural anisotropy and dimensionality strongly influence vibrational and radiative behaviour.

With the use of Density Functional Theory (DFT) methods, a wide benchmark of functionals was performed using both plane-wave (PW) and localized-orbital (LO) methods, demonstrating the feasibility of LO approaches as an alternative to PW. This framework allowed for the reproduction of high-fidelity Raman spectra within the harmonic approximation. To go beyond, full anharmonic contributions were computed to evaluate phonon-phonon interactions and simulate the infrared properties such as reflectance, transmittance and emissivity, matching the experimental observations and bridging the current gap from *ab initio* methods to infrared optical response.