

Etude numérique des propriétés thermo-optiques du dioxyde de vanadium (VO₂) appliquées à la rectification thermique radiative

O.Iken^{1*} ; R.Agounoun¹ ; A.Zoubir¹ ; M.Rahmoune¹ ; K.Sbai¹ ; R.Saadani¹

¹Laboratoire d'Etude des Matériaux Avancés et Applications (LEM2A), Université Moulay Ismail, Faculté des Sciences, École Supérieure de Technologie Meknès, Maroc.* omar.iken0@gmail.com

Résumé

Un calcul des coefficients optiques de transmission et de réflexion a été réalisé pour un film de 50 nm de VO₂ déposé sur un substrat de verre. Sachant que la température de transition isolant/métal du VO₂ est T_c= 68°C, ces coefficients ont été déterminés pour plusieurs températures entre T_i = 22°C < T_c et T_m = 100°C > T_c. Ce choix de températures, nous a permis de voir l'impact de la transition sur les taux de transmission/ réflexion du VO₂ pour les longueurs d'ondes visible-proche infrarouge [380 ; 2500 nm]. Nous avons utilisé la théorie matricielle de F. Abelès pour le calcul des coefficients à partir des paramètres optiques n et k en passant par la détermination de la constante diélectrique $\epsilon(\lambda, T)$.

Mots clefs : *rectification thermique radiative, thermo chromique, transmission, réflexion, transition isolant/métal.*

1. Introduction

Le dioxyde de vanadium est un matériau thermo-chromique capable de passer d'un état isolant à un état métallique autour d'une température de transition T_c= 68°C [1]. L'état isolant du VO₂ est caractérisé par une grande transparence aux rayons du spectre visible-proche infrarouge, par contre à l'état métallique, le VO₂ devient plus réfléchissant aux rayons du proche infrarouge. La capacité de ce matériau à changer de comportement optique représente un potentiel d'application à l'isolation thermique des bâtiments. Dans cet article, nous allons mettre en évidence l'effet de la transition isolant (transparent) / métallique (réfléchissant) à partir d'une étude numérique basée sur les données des constantes optiques n (indice de réfraction) et k (coefficient d'extinction) en fonction de la longueur d'onde et pour plusieurs valeur de température autour de la température de transition T_c [2].

2. Etat de l'art

L'objectif de ce travail est de calculer les coefficients de transmission et de réflexion d'une couche de VO₂ de 50nm déposée sur une couche de verre standard de quelques millimètres d'épaisseur. L'ensemble des travaux déjà réalisés pour la caractérisation du VO₂

essayent de comprendre quantitativement et qualitativement l'effet de la transition d'état du VO₂ sur les rayons solaires. Cette transition d'état est le résultat d'un changement de la structure cristalline induit par la température. Pour T < T_c, le VO₂ est sous la forme monoclinique (figure 1, a). Cette structure implique un comportement semi-conducteur du matériau d'après Goodenough [3]. D'un point de vue optique, le comportement SC engendre une grande transparence par rapport aux longueurs d'ondes du spectre proche-infrarouge [4], les rayons de cette gamme spectrale sont connus par leur énergie thermique importante, ce qui implique une conductivité thermique élevée dans l'état SC du VO₂. Pour T > T_c, le VO₂ est sous la forme cristalline quadratique (rutile) (figure 1, b). Ce réarrangement de la maille cristalline se traduit par un état métallique du matériau. Cela est lié au changement des distances interatomique V-O [5] (variation de l'énergie de gap). L'état métallique donne un aspect opaque et réfléchissant pour les rayons proche-infrarouge, ce qui implique une isolation thermique importante.

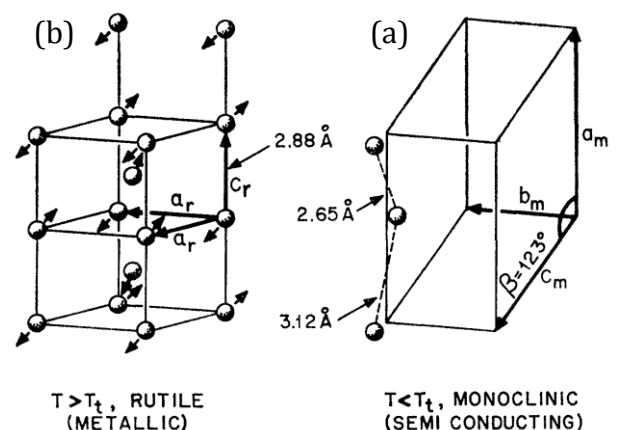


Figure 1 : Illustration de la structure cristalline des deux états du VO₂ (a) cristal monoclinique (Métal) (b) cristal tétragonal (SC).

3. Théorie et calcul numérique

Nous avons simulé l'interaction d'une onde électromagnétique (rayons solaires) avec une couche mince (50nm) de VO₂ déposée sur un substrat de verre standard d'épaisseur de 3 mm et d'indice de réfraction n=1.5. Nous nous sommes basés sur les résultats des constantes optiques n (indice de réfraction) et k (coefficient d'extinction) en fonction de la longueur d'onde et pour plusieurs températures autour de T_c rapportés par N.R. Mlyuka et al [2]. Ces deux constantes n et k représentent respectivement la partie réelle et imaginaire de la constante diélectrique complexe ε du VO₂.

$$\varepsilon(\lambda, T) = n(\lambda, T) + ik(\lambda, T) \quad (3.1)$$

La variation de ε(λ, T) implique le changement du comportement optique de la couche de VO₂ représentée selon S. Berthier et al [6] par sa matrice caractéristique qui relie les amplitudes des champs électrique E et magnétique H à l'entrée et à la sortie de la couche mince.

$$M_n(z_n) = \begin{bmatrix} m_{11} & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos \beta_n & \frac{i}{g_n} \sin \beta_n \\ i g_n \sin \beta_n & \cos \beta_n \end{bmatrix} \quad (3.2)$$

$$\text{Avec } g_n = \sqrt{\frac{\varepsilon_n}{\mu_n}}, \quad \beta_n = \frac{2\pi z_n}{\lambda} \sqrt{\varepsilon_n \mu_n}$$

Et z_n, ε_n, μ_n, sont respectivement l'épaisseur, la constante diélectrique et la perméabilité magnétique de la n^{ième} couche du système multicouche. Les composantes de la matrice M_n entrent dans le calcul des coefficients de réflexion et de transmission de la structure multicouche.

$$r = \frac{g_0(m_{11} + g_s m_{12}) - (m_{21} + g_s m_{22})}{g_0(m_{11} + g_s m_{12}) + (m_{21} + g_s m_{22})} \quad (3.3)$$

$$t = \frac{2g_0 \exp\left(\frac{2i\pi n_0 D}{\lambda}\right)}{g_0(m_{11} + g_s m_{12}) + (m_{21} + g_s m_{22})} \quad (3.4)$$

De ces expressions, on extrait les valeurs des intensités transmises T et réfléchies R :

$$R = \|r \times r^*\| \quad (3.5)$$

$$T = Re \left(\sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\varepsilon_s}} * \|t \times t^*\| \right) \quad (3.6)$$

Nous avons réalisé un programme sous Matlab afin de faire ces calculs pour plusieurs températures entre 22°C et 100°C et pour des longueurs d'ondes entre 380 nm et 2500 nm.

4. Résultats et discussions

Les résultats de cette étude numérique montrent l'évolution des propriétés optiques du dioxyde de vanadium en fonction de la température. Les courbes des indices de réfraction n(λ, T) montrent deux points constants, le premier au milieu du spectre visible à 500 nm avec une valeur de 2.7, le deuxième point est localisé vers 2200 nm avec une valeur de 3 (figure 2). L'indice de réfraction n(λ=1000nm, T [22,100°C]) varie entre 1.7 et 3, et le coefficient d'extinction k(λ=1000nm, T [22,100°C]) varie entre 0.5 et 1.5 (figure 3). Ce résultat est en accord avec les valeurs de Kakiuchida et al [7] pour la même gamme de température.

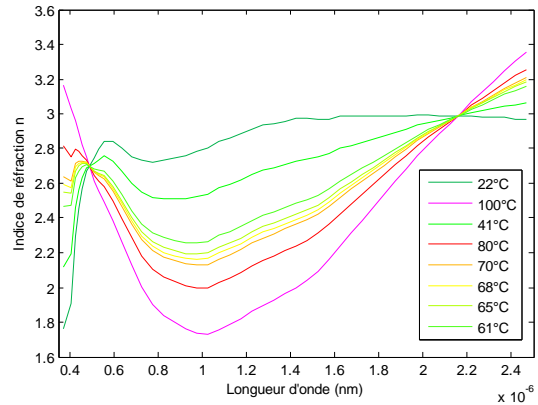


Figure 2 : Evolution de l'indice de réfraction n en fonction de la longueur d'onde pour plusieurs températures

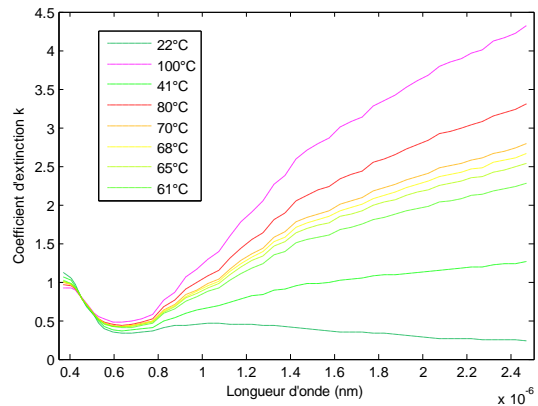


Figure 3 : Evolution du coefficient d'extinction k en fonction de la longueur d'onde pour plusieurs températures

Les coefficients de réflexion R et de transmission T varient fortement pour les longueurs d'ondes du proche infrarouge. La transmission du système VO₂ + verre pour une température de 22°C est de 90%, cette valeur est caractéristique du verre amorphe standard, ce qui implique qu'à cette température la couche mince du VO₂ reste passive, par contre cette valeur de transmission diminue avec l'augmentation de la température. À 68°C, qui est la température de transition SC-Métal, la valeur de la transmission est de 67% pour λ = 2480nm. Le coefficient de réflexion évolue dans le même sens que la

température en tenant compte de la relation $R = 1 - T$. À 68°C la valeur de R est de 33% pour une longueur d'onde infrarouge de 2480 nm. Ces résultats confirment le fort potentiel du dioxyde de vanadium pour l'application à la rectification thermique radiative. La nature numérique de ces résultats ne prend pas en considération plusieurs contraintes liées à la fabrication d'échantillons expérimentaux. Parmi ces contraintes, il y'a le problème d'adhérence du VO₂ au verre amorphe, et la nécessité d'une couche intermédiaire d'oxyde d'Aluminium (verre saphir) Al₂O₃ [4] ou le dépôt direct sur un substrat de SiO₂. Ces solutions affectent les valeurs des coefficients de transmission et de réflexion du système multicouche.

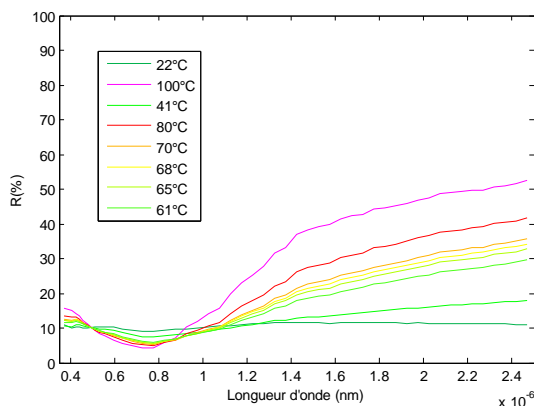


Figure 4 : Coefficient de réflexion en fonction de longueur d'onde pour plusieurs températures.

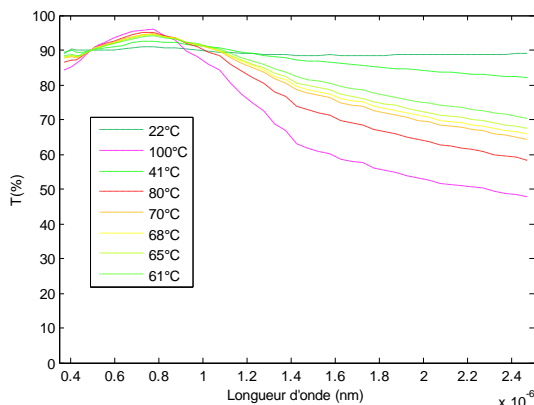


Figure 4 : Coefficient de transmission en fonction de longueur d'onde pour plusieurs températures.

5. Conclusion et perspectives

Une étude numérique des propriétés optiques a été réalisée pour une couche de 50 nm de VO₂ déposée sur un substrat de verre amorphe. Cette étude est basée sur la forte dépendance des constantes optiques n et k du VO₂ à la température. Avec ce travail, nous avons pu mettre en évidence cette dépendance, et aussi son impact sur les taux de transmission et de réflexion. Cela nous a permis d'investiguer la possibilité d'appliquer le VO₂ à la rectification thermique radiative, sachant qu'un travail supplémentaire est nécessaire afin de diminuer la température de transition pour atteindre la température

de confort, chose qui est déjà en cours d'étude avec les travaux de W. Burkhardt et al [8] sur le dopage du VO₂ par des éléments comme le tungstène W ou le fluore F et qui peut diminuer la température de transition jusqu'à 25°C. Parmi les perspectives de cette étude, la quantification des taux de transmission et de réflexion pour un système composé d'une matrice diélectrique remplie d'inclusions (nanoparticules) de VO₂, l'objectif de ce travail sera d'investiguer à l'échelle atomique le comportement de ce matériau en fonction de la température, pour cela, il sera nécessaire de résoudre l'équation de transfert radiatif en passant par une méthode de détermination de la constante diélectrique effective du système.

Références

- [1] F.J. Morin, *Oxides which show metal-to-insulator transition at the neel temperature*, Physical review letters volume 3 (1959) pages 34-36.
- [2] N.R. Mlyuka, G.A. Niklasson, C.G. Granqvist, *Thermochromic multilayer films of VO₂ and TiO₂ with enhanced transmittance*, Solar Energy Materials & Solar Cells volume 93 (2009) pages 1685- 1687.
- [3] J. B. Goodenough, *J. Solid State Chem.* 3, 490 (1971)
- [4] K. Laaksonen, S.-Y. Li, *Nanoparticles of TiO₂ and VO₂ in dielectric media: Conditions for low optical scattering, and comparison between effective medium and four-flux theories*, Solar Energy Materials & Solar Cells volume 130 (2014) pages 132-137.
- [5] Hans W. Verleur, A. S. Barker, Jr., and C. N. Berglund, *Optical properties of VO₂ between 0.25 and 5 eV*, Physical review volume 172, 3 (1968) pages 788-798.
- [6] S. Berthier, J. Lafait, *Modélisation des propriétés optiques des milieux inhomogènes à structures complexes*, Journal de physique colloque, volume 42, (1981) C1 pages 285-299.
- [7] Hiroshi Kakiuchida, Ping Jin, Setsuo Nakao, Masato Tazawa, *Optical Properties of Vanadium Dioxide Film during Semiconductive-Metallic Phase Transition*, Japanese Journal of applied Physics, volume 46, (2007) pages L113-L116.
- [8] Burkhardt W, Christmann T, Meyer BK, Niessner W, Schalch D, Scharmann A, *W- and F-doped VO₂ films studied by photoelectron spectrometry*. Thin Sol. Films, volume 345 (1999) pages 229-235.