

Formulación de vidrios absorbentes del calor

Formulation of heat absorbing glasses

PEDRO ALVAREZ-CASARIEGO, Ldo. Ciencias Químicas y PEDRO MAZÓN, Ldo. Ciencias Físicas
CIDA-CRISTALERÍA ESPAÑOLA, S.A.

Fecha de recepción: 13-III-96

Fecha de aceptación: 1-V-96

ESPAÑA

RESUMEN

En los intercambios de energía entre un edificio y el medio exterior, el vidrio es el elemento de mayor importancia, por su influencia en la Ganancia de Calor Solar y en las Pérdidas Térmicas. Estos parámetros pueden ser modificados mediante el depósito de capas sobre el vidrio o mediante la adición de compuestos absorbentes de la radiación solar.

Esta última vía es la más económica para controlar la Ganancia de Calor Solar. El conocimiento de las leyes que gobiernan la interacción de los diversos colorantes con la radiación solar, permite definir formulaciones de vidrios con características específicas de tipo estético y de absorción energética.

En este trabajo se presentan dos ejemplos de aplicación de esta modelización de las características de absorción espectral de los colorantes en el vidrio, en un caso para la obtención de vidrio de alta transmitancia luminosa y baja transmitancia energética, y en otro para vidrio de color neutro y transmitancia energética minimizada. Se definen para ambos las fórmulas de cálculo utilizadas y las propiedades fotométricas obtenidas. Estos vidrios son particularmente aptos para su empleo tanto en edificación como en automoción, ya que mantienen todas las cualidades mecánicas y posibilidades de transformación de cualquier vidrio normal.

SUMMARY

In the thermal exchanges between buildings and environment, glazing is an element of major importance, for it largely influences the so-called Solar Heat Gain and Thermal Losses. These parameters can be modified by applying different type of coatings onto glass surface or by adding colorant compounds during glass melting.

The latter is a cheaper way to control the Solar Heat Gain. The knowledge of the laws governing the interaction between colorant compounds and solar radiation, allows us to define glass formulations achieving specific aesthetic requirements and solar energy absorption.

In this paper two examples of application of the modelling of glass colorants spectral absorptance are presented. First is addressed to obtaining a glass with high luminous transmittance and low solar energy transmittance, and the other one to obtaining a glass with neutral colour appearance and minimized solar energy transmittance. Calculation formulas are defined together with photometric properties so-obtained. These type of glasses are particularly suitable to be used as building and automotive glazing, for they retain the mechanical characteristics and possibilities of transformation of standard glass.

INTRODUCCIÓN

El acristalamiento, como una parte de las ventanas, es con diferencia el elemento más activo de intercambio energético entre los edificios y el medio exterior. Los intercambios térmicos se realizan a su través, en ambas direcciones, principalmente la llamada Ganancia de Calor Solar (ocasionada por la radiación solar a través del acristalamiento) y las Pérdidas Térmicas (referidas a las pérdidas de calor por conducción e irradiación hacia el exterior en el infrarrojo medio y lejano).

El control de estos intercambios constituye un objetivo prioritario del diseño de un acristalamiento. Las capas delgadas depositadas sobre la(s) superficie(s) del vidrio

INTRODUCTION

Glazing, as a part of windows, is by far the most energetic active interface between buildings and environment. Thermal exchanges occur through it in both directions, mainly the so-called Solar Heat Gain (which accounts for the solar radiation across the glazing) and the Thermal Losses (related to heat losses by conduction and medium-far infrared outer irradiation).

Controlling those exchanges constitutes a major goal in glazing design. Thin films deposited onto glass surface(s) by various methods are nowadays becoming

mediante procedimientos diversos están adquiriendo actualmente gran popularidad para dicho control. Sin embargo, los vidrios coloreados absorbentes del calor permanecen como una alternativa más barata para controlar la ganancia de calor solar, por sí mismos o combinados con las soluciones de capas delgadas.

Este artículo trata sobre el control de la ganancia de calor solar mediante vidrios absorbentes del calor. En él se explica de qué manera interactúan con el espectro de la radiación solar los colorantes disueltos en una matriz vítrea, impartiendo al acristalamiento final su color y sus características de transmisión de la energía solar.

El conocimiento de las leyes que gobiernan esta interacción y su modelización matemática, nos permiten definir fórmulas colorantes para el vidrio sintonizadas con requerimientos estéticos específicos y optimizadas para conseguir que la transmisión energética solar sea lo más reducida posible. También pueden tenerse en cuenta, en caso necesario, limitaciones relativas a las transferencias térmicas por radiación en el interior del horno.

En una publicación previa (1) hemos descrito un sistema similar, que utiliza las mismas estrategias, para la formulación de vidrios destinados a los acristalamientos coloreados de automóviles.

TEORÍA

Para el cálculo y la expresión del color, utilizaremos el sistema CIE 1931 (2) y su observador estándar, obteniendo el valor de la transmitancia luminosa y las coordenadas de cromaticidad (x e y) para el iluminante D65, como es práctica habitual en el caso de acristalamientos para edificios.

Este sistema es aún el más ampliamente utilizado, pese a no ser el más recomendable debido a su bien conocida falta de uniformidad en relación a la sensibilidad humana para la discriminación de los colores. Por la misma razón, citaremos frecuentemente los valores de la longitud de onda dominante (λ_D) y de la pureza (P), tal como se definen en el sistema Helmholtz, en lugar de los valores de cromaticidad (x, y), ya que estos últimos están menos intuitivamente relacionados con un tono de color específico.

Los valores triestímulo se obtienen mediante expresiones del tipo:

$$A = K \int_{\lambda} [\tau(\lambda) S(\lambda) \bar{a}(\lambda)] d\lambda \quad [1]$$

Siendo A uno de los valores triestímulo (X, Y o Z), $\bar{a}(\lambda)$

very popular for such a control. However, heat absorbing tinted glasses stay as a cheaper way to control the solar heat gain, alone or combined to thin film solutions.

This paper deals with solar heat gain control by heat absorbing glasses. It explains how the colorants dissolved in a glass matrix interact with solar radiation spectrum giving to final glazing its colour and solar energy transmission characteristics.

The knowledge of the laws governing that interaction and its mathematical modelling, allows us to define glass colouring formulas tuned to specific aesthetic requirements and optimized to achieve a solar energy transmission as reduced as possible. Limitations concerning the radiation thermal transfer into the furnace can also be taken in account, if necessary.

In a previous paper (1) we described a similar approach, using the same strategies, for glass formulations intended for coloured automotive glazings.

THEORY

For the calculation and expression of the colour, the CIE 1931 (2) system and standard observer will be used, obtaining the luminous transmittance value (T_l) and the chromaticity coordinates (x and y) for the illuminant D65, as is common practice in the case of building glazings.

This system is still the most widely used in spite of not being the most recommendable owing to its well-known lack of uniformity, related to the human sensitivity for colour discrimination. For the same reason, the dominant wavelength (λ_D) and excitation purity (P) values as defined in the Helmholtz system will be frequently cited instead of the chromaticity values (x, y), as the latter are less intuitively related to a specific hue.

The tristimulus values are obtained by expressions of the type:

$$A = K \int_{\lambda} [\tau(\lambda) S(\lambda) \bar{a}(\lambda)] d\lambda \quad [1]$$

A being the tristimulus values (X, Y or Z), $\bar{a}(\lambda)$ the

la función correspondiente de evaluación espectral ($\bar{x}(\lambda)$, $\bar{y}(\lambda)$ o $\bar{z}(\lambda)$), $\tau(\lambda)$ la transmitancia espectral del vidrio, $S(\lambda)$ la distribución energética espectral del iluminante, y la constante K dada por:

$$K = \frac{100}{\int_{\lambda} [S(\lambda) \bar{y}(\lambda)] d\lambda} \quad [2]$$

Las coordenadas de cromaticidad x e y se obtienen a partir de los valores triestímulo dividiendo el triestímulo correspondiente (X, Y) por la suma de los tres (X + Y + Z).

A efectos prácticos debe mencionarse que los valores triestímulo se calculan usualmente mediante sumas, recomendándose un intervalo de cálculo de 5 nm.

Para el cálculo y expresión de la transmitancia energética utilizaremos una expresión análoga a la de los valores triestímulo, aunque en este caso, al no existir observador, no se incluye la función de evaluación espectral. La distribución de energía del iluminante es la tabulada por P. Moon (3) para la radiación solar a nivel del suelo y masa de aire $m = 2$, condiciones normales para el cálculo de la transmitancia energética de la radiación solar en acristalamientos:

$$T_E = \frac{100 \int_{\lambda} [\tau(\lambda) S(\lambda)] d\lambda}{\int_{\lambda} S(\lambda) d\lambda} \quad [3]$$

Como en el caso del color, la transmitancia energética se calcula mediante sumas.

La transmitancia espectral, única variable de las expresiones previas, puede expresarse en función de las concentraciones de colorantes (4, 5) de acuerdo con:

$$\tau(\lambda) = (1 - r\lambda)^2 10^{-d \sum \epsilon_i(\lambda) c_i} \quad [4]$$

En la práctica, $(1 - r\lambda)^2$ puede ser considerado constante e igual a 0,9216 para los vidrios sodocálcicos con un índice de refracción de $n = 1,5$. Para un espesor d dado, si las concentraciones de colorantes c_i y sus coeficientes de extinción $\epsilon_i(\lambda)$ son conocidos, es posible calcular $\tau(\lambda)$ y, por lo tanto, cualquiera de las propiedades espectrales que dependen de dicha magnitud (color, T_E ...). Una aplicación para el caso del color está detalladamente descrita en (4)

RESULTADOS

El método descrito permite la formulación de colorantes para obtener propiedades espectrales específicas. Aunque su precisión es bastante satisfactoria, no es un

corresponding spectral evaluation function ($\bar{x}(\lambda)$, $\bar{y}(\lambda)$ or $\bar{z}(\lambda)$), $\tau(\lambda)$ the spectral transmittance of the glass, $S(\lambda)$ the spectral energetic distribution of the illuminant, and the constant K is given by:

$$K = \frac{100}{\int_{\lambda} [S(\lambda) \bar{y}(\lambda)] d\lambda} \quad [2]$$

The chromaticity coordinates x and y are obtained from the tristimulus values by dividing the corresponding tristimulus (X, Y) by the sum of the three (X + Y + Z).

For practical purposes it should be mentioned that the tristimulus values are usually calculated by means of summation, with the use of a calculation interval of 5 nm being recommended.

To calculate and to express the solar energy transmittance, an analogous expression to that for the tristimulus values will be used, although in this case, as there is no observer, the spectral evaluation function is not included. The energy distribution of the illuminant is as tabulated by P. Moon (3) for solar radiation at ground level and air mass $m = 2$, normal conditions for the calculation of the solar energy transmittance in glazings:

$$T_E = \frac{100 \int_{\lambda} [\tau(\lambda) S(\lambda)] d\lambda}{\int_{\lambda} S(\lambda) d\lambda} \quad [3]$$

As in the case of colour, the solar energy transmittance is calculated by means of summation.

The spectral transmittance, the only variable in the previous expressions, can be expressed as a function of the colorant concentrations (4, 5) according to:

$$\tau(\lambda) = (1 - r\lambda)^2 10^{-d \sum \epsilon_i(\lambda) c_i} \quad [4]$$

In practice, $(1 - r\lambda)^2$ can be considered a constant and equal to 0.9216 for sodalime glasses with a refraction index of $n = 1.5$. For a given thickness d, if the colorants concentrations c_i and their extinction coefficients $\epsilon_i(\lambda)$ are known, it is possible to calculate $\tau(\lambda)$ and consequently any of the spectral properties that depend on this value (colour, T_E ...). An application for the case of colour is described in detail in (4).

RESULTS

The method described permits the formulation of colorants to obtain specific spectral properties. Although its precision is quite satisfactory, it is not an

método exacto. Más aún, algunos colorantes presentan un comportamiento anómalo, como el Fe(III) cuyo coeficiente de extinción aumenta notablemente a partir de un nivel de concentración determinado en el vidrio (6), o el Se que presenta una dependencia muy fuerte del grado de oxidación del vidrio y de la cantidad de Fe(III) presente, a causa de la formación de un cromóforo mixto.

Por esta razón se recomienda con énfasis realizar la fusión experimental del vidrio obtenido por cálculo [1, 4] de manera que pueda medirse su transmitancia espectral y calcular mediante el mismo método las correcciones de color eventualmente necesarias. La utilización de este proceso permite alcanzar el objetivo con gran precisión y rapidez.

Se presentan dos tipos de vidrios:

- Vidrios de elevada transmitancia luminosa, con una relación TL/TE optimizada y de color verde.
- Vidrios de baja transmitancia luminosa, con aspecto neutro y buena protección solar.

Para los vidrios de elevada transmitancia luminosa, se han estudiado formulaciones basadas únicamente en el Fe(II) y el Fe(III) como agentes colorantes, ya que esta combinación permite obtener la mínima TE manteniendo un nivel considerable de iluminación natural en el interior del edificio y un índice aceptable de reproducción del color (medida de la fidelidad de la percepción del color).

Tomando como ejemplo los vidrios de TL = 72 %, se muestra en la Fig. 1 la influencia del Redox (fracción del hierro presente como ferroso) sobre el valor de TE. Para un Redox dado, el contenido total de Fe se fija para obtener TL = 72 % (a un espesor dado).

La Fig. 2 muestra la influencia del Redox sobre la cromaticidad de este tipo de vidrio, por medio de la longitud de onda dominante y la pureza. En ambos casos se omite la influencia de la posible formación del cromóforo ámbar, para $R_{dx} \geq 0,65$.

Una vez que han sido establecidos el valor de TL (72 %) y el espesor, el resto de los parámetros considerados (TE, λD , % P, R_{dx}) son totalmente dependientes entre sí y cuando uno de ellos ha sido determinado, los restantes quedan fijados.

Este tipo de producto ya ha sido obtenido industrialmente por el Grupo Saint-Gobain, con las características que se muestran en la Tabla 1.

exact method. Moreover, some colorants exhibit an anomalous behaviour, like Fe(III) whose extinction coefficient increases notably from a specific concentration in the glass (6), or Se which shows a very strong dependence on the degree of oxidation of the glass and the amount of Fe(III) present, due to the formation of a mixed chromophore.

For this reason the experimental fusion of the glass obtained by calculation is strongly recommended [1, 4] so that its spectral transmittance can be measured and the necessary colour corrections, if any, calculated by the same method. Using this process the target can be reached with great precision and speed.

Two different types of glasses are presented:

- High luminous transmittance glasses, with an optimized TL/TE ratio and a green hue.*
- Low luminous transmittance glasses, with a neutral appearance and good solar protection.*

For high luminous transmittance glasses, only formulas based on Fe(II) and Fe(III) as colouring agents have been studied, as this combination allows the lowest TE, while maintaining a considerable level of daylight inside the building and an acceptable colour rendering index (a measure of the fidelity in colour perception).

Taking the TL = 72 % glasses as an example, the Redox (fraction of iron present as ferrous) influence on the TE value is shown in Fig. 1. For a given Redox, the total Fe content is fixed to obtain TL = 72 % (at a given thickness).

Fig. 2 shows the influence of the Redox on the chromaticity of this type of glass, by means of the dominant wavelength and excitation purity. In both cases the influence of the possible formation of the amber chromophore, for $R_{dx} \geq 0,65$, is omitted.

Once the TL (72 %) and the thickness (6 mm) have been established, the rest of the parameters considered (TE, λD , % P, R_{dx}) are totally dependent on each other and when one has been determined the rest are fixed.

This type of product has already been obtained industrially by the Saint-Gobain Group, with the characteristics given in Table 1.

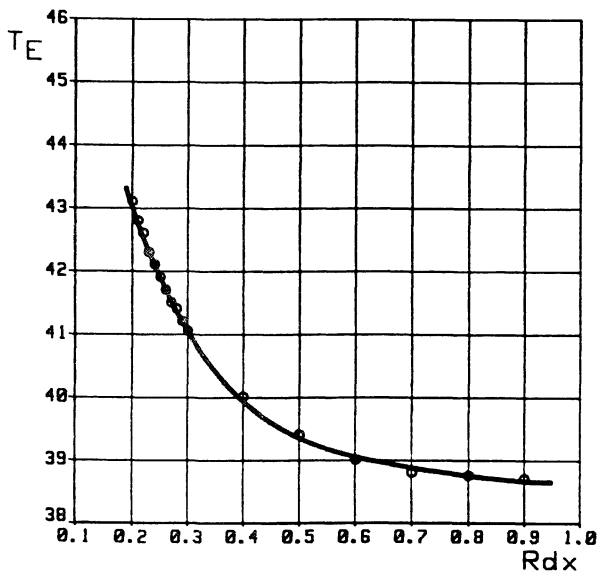


Fig. 1.- TE vs Rdx para TL = 72 %.

Fig. 1.- TE vs Rdx for TL = 72 %.

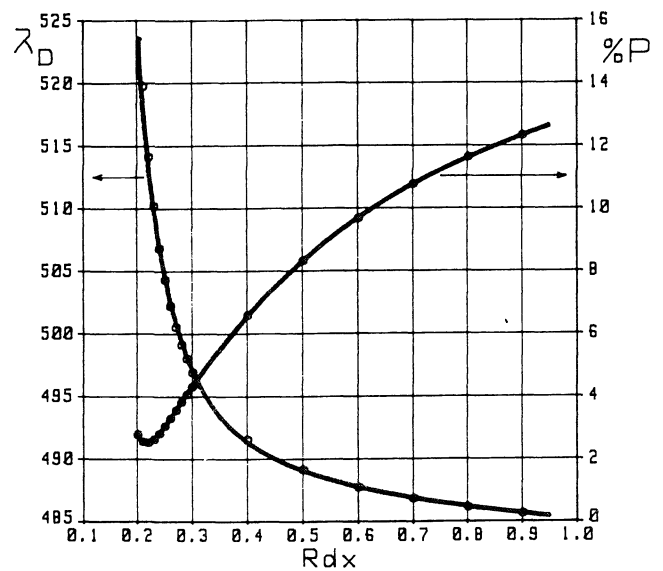


Fig. 2.- λ_D y %P vs Rdx para TL = 72 %.

Fig. 2.- λ_D y %P vs Rdx for TL = 72 %.

TABLA I (TABLE I)

Vidrio verde PARSOL (PARSOL green glass)

Espesor (Thickness)	%TL	%TE	λ_D (nm)	%P
6 mm	72	41	499	4

Estos resultados muestran el progreso realizado. Hace tan solamente cinco años los valores de TE eran unos 8 puntos más elevados, para la misma transmitancia luminosa. Por otra parte, el color continúa siendo un verde más bien neutro (Pureza inferior a 5 %), lo que resulta bien apreciado para este tipo de aplicación.

En cuanto a los vidrios de baja transmitancia luminosa y color neutro, las formulaciones obtenidas son más complicadas, ya que se utilizan como mínimo cuatro agentes colorantes, dos de los cuales son el Fe(II) y el Fe(III). En este caso es particularmente útil el conocimiento de las direcciones de influencia de los diferentes agentes colorantes en el diagrama cromático (x, y), lo que resulta posible mediante el método de cálculo descrito, tal y como se muestra en la Fig. 3 para un tipo particular de vidrio.

Generalmente, los vidrios obtenidos con Fe como único colorante y con un Rdx moderado (de 0,20 a 0,30) conducen a colores con un tono verde amarillento excesivo. Si se desean colores realmente

These results show the progress made. Only five years ago the TE values were about 8 points higher, for the same luminous transmittance. On the other hand, the colour continues to be rather neutral green (Excitation Purity less than 5 %), well-received for this type of application.

As to the low luminous transmittance and neutral colour glasses, the formulas obtained are more complicated, as a minimum of four colouring agents are used, two of which are Fe(II) and Fe(III). In this case it is particularly useful to know the directions of influence of the different colouring agents in the chromatic diagram (x, y), made possible by the calculation method described, as shown in Fig. 3 for a particular type of glass.

Generally, glasses obtained with only Fe as a colouring agent and for a moderate Rdx (0.20 to 0.30) lead to colours with an excessive yellowish green hue. If really neutral colours are desired, apart from the

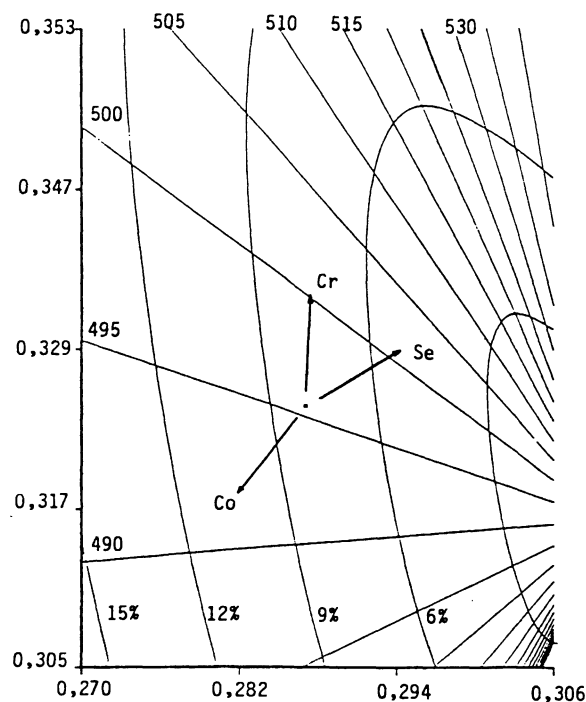


Fig. 3.-Vectores de influencia.
Fig. 3.- Influence vectors.

TABLA II (TABLE II)

Vidrios de color neutro absorbentes del calor (*Neutral-colour heat-absorbing glass*)

Espesor (<i>Thickness</i>)	%TL	%TE	λD (nm)	%P
6 mm	43	30	510	1,5

neutros, aparte del tono indicado, con valores de pureza inferiores a 2 %, es necesario utilizar en la correspondiente formulación Se y Co, además del Fe. La Tabla 2 muestra un ejemplo de las propiedades obtenidas en uno de estos vidrios:

En este caso el progreso es aún más marcado, ya que por comparación a los vidrios grises preexistentes esta formulación consigue una reducción de 18 puntos en el valor de TE. El bajo valor de la Pureza asegura la fidelidad para la percepción de los colores y la baja transmitancia luminosa proporciona un efecto de sombra, que produce una mejora del confort visual en caso de radiación solar intensa.

CONCLUSIONES

La utilización de la modelización matemática, para predecir la influencia de los colorantes sobre las

hue indicated, with excitation purity values of less than 2 %, it is necessary to use Se and Co, in addition to Fe, in the corresponding formula. Table 2 shows an example of the properties obtained in one of these glasses:

The progress in this case is even more marked, since a reduction of 18 points in the TE value can be achieved with this formula as compared to the pre-existent grey glasses. The low excitation purity ensures the fidelity in colour perception, and the low luminous transmittance gives a fading effect, wich results in a increased visual comfort in case of strong solar irradiation.

CONCLUSIONS

The use of mathematical modelling to predict the influence of the various colouring agents on the

propiedades espectrales de los vidrios, es una potente herramienta para la definición de las formulaciones requeridas para conseguir propiedades específicas en los vidrios.

Se presentan los resultados de la aplicación de esta metodología a la definición de formulaciones de elevada transmitancia luminosa y de baja transmitancia luminosa-color neutro para vidrios absorbentes del calor.

La fusión experimental a escala de laboratorio y la medida de las formulaciones así definidas, permite la verificación de las propiedades buscadas y constituye el primer paso para su extrapolación a la producción industrial.

spectral properties of glass is a powerful tool to define the formulas required to obtain specific properties of glass.

The results of the application of this approach to the definition of high luminous transmittance and low luminous transmittance-neutral colour heat absorbing glasses have been shown.

Experimental melting at the laboratory scale and measurement of the so-defined formulas allow for the verification of the foreseen properties, and constitutes the first step for its extrapolation to industrial production.

BIBLIOGRAFÍA

- (1) ALVAREZ-CASARIEGO P.: "Functional automotive glass". The formulation of colorants. Proc. of XVI International Congress on Glass. Madrid (1992) 6, pp. 235-240.
- (2) CIE.: "Colorimetry". Publication CIE 15.2. Austria (1986).
- (3) MOON P.: "Proposed Standard Solar-Radiation curves for engineering use". J. Franklin Institut (1940) 203, pp. 583-617.
- (4) GAGO R., JOGLAR A.: "El color del vidrio: una propiedad científicamente medible y calculable". Anales de la Universidad Hispalense (1978) 21, pp. 117-146.
- (5) BAMFORD C.R.: "Colour Generation and Control in Glass". Elsevier. Amsterdam-Oxford-New York (1977) pp. 12-13.
- (6) MAZON P.: "The effect of Fe (III) concentration on its molar absorptivity in silicate glasses". Proc. of XVI International Congress on Glass. Madrid (1992) 4, pp. 181-186.

* * *