

DETERMINACIÓN DE CURVAS DE CONCENTRACIÓN POR INTERFEROMETRÍA DE CORRELACIÓN DE SPECKLE DIGITAL

E. E. Alanís, C. C. Martínez, L. Alvarez, G. G. Romero*

Facultad de Cs. Exactas, Consejo de Investigación,
Universidad Nacional de Salta,
Buenos Aires 177, 4400 Salta, Argentina
alanise@ciunsa.edu.ar

Se propone un método experimental para determinar la curva concentración-posición en una experiencia de difusión en soluciones salinas transparentes, a partir de la cual se calcula el coeficiente de difusión. Se utiliza la técnica de interferometría speckle digital para obtener franjas de correlación de speckle producidas por las variaciones de índice de refracción en la solución. Las imágenes son procesadas utilizando el método del análisis de Fourier para medir la fase. módulo 2π , del interferograma. La fase desenvuelta se correlaciona directamente con la distribución de índice de refracción a lo largo de la celda de difusión y a su vez con la distribución de concentración. Se describe el dispositivo interferométrico utilizado, similar a un interferómetro Mach-Zehnder, y se discute la forma de disminuir los errores de refracción producidos por el gradiente de concentración.

In this work, the use of the digital speckle pattern interferometry for the determination of the diffusion coefficient in saline solutions, is proposed. The phase of the intensity variations, module 2π , across the speckle correlation fringes is determined by applying the Fourier-transform methods. Assuming linear dependence of the refraction index with the concentration, the unwrap of the phase gives a curve afin to the theoretical concentration-position function. The value of the diffusion coefficient D is obtained by means of an iterative process, comparing both experimental and theoretical curves. by adjusting the parameter D .

I. INTRODUCCIÓN

En este trabajo se describe una experiencia donde se mide el coeficiente de difusión D en soluciones salinas, basada en la interferometría por correlación de speckle. El método utilizado pertenece al caso en que el sistema se encuentra en un estado no estacionario⁽¹⁾ y se mide la distribución espacial de concentración $C(x,y,z,t)$ en un dado tiempo, t . Tanto el diseño de la celda de difusión como las condiciones iniciales se eligen de tal modo que la distribución sea unidimensional, facilitando de esta manera el relevamiento de la curva concentración-posición. A partir de la curva experimental se obtiene el coeficiente de difusión, D , por comparación con la distribución teórica, solución de la ecuación diferencial dada por la Segunda Ley de Fick, con las condiciones iniciales correspondientes al experimento.

Existen numerosos métodos ópticos para medir el índice de refracción a lo largo de la dirección de difusión, a partir del cual puede encontrarse la distribución de concentración si se conoce la relación entre ambas magnitudes. Recientemente se ha introducido el uso de la interferometría holográfica a tiempo real como una técnica sencilla y precisa para la medición del coeficiente de difusión en soluciones acuosas. Gabelmann y Fenichel⁽²⁾ presentan un tratamiento matemático cuyas aproximaciones limitan su validez a ciertos sistemas y condiciones experimentales. Posteriormente, Ruiz-Beviá *et al*⁽³⁾ desarrollan un tratamiento matemático más riguroso donde se destacan las ventajas de la interferometría holográfica frente a otras técnicas clásicas de interferometría. En trabajos más recientes, Fernández *et al*⁽⁴⁾ utilizan este método para medir

D en glicoles. Sin embargo las iteraciones necesarias para minimizar los errores hacen laboriosa su implementación. En un trabajo reciente⁽⁵⁾ se ha utilizado una técnica experimental similar a la descrita por Ruiz-Beviá *et al*⁽³⁾, donde se introdujeron algunas mejoras para minimizar los errores de refracción y se propuso un método para la reducción de los datos que facilita el proceso de iteración en el cálculo del coeficiente D .

No obstante las ventajas mencionadas de la interferometría holográfica, en dicha técnica subsisten aún los inconvenientes propios del proceso de revelado, necesario tanto en la etapa de construcción de los hologramas como en el registro fotográfico de los interferogramas. Además, la etapa de medición de las franjas de interferencia para obtener los datos suministrados por la experiencia, a partir de los negativos, es una tarea delicada que puede introducir errores adicionales.

En otros recientes trabajos^(6,7), se propone una nueva técnica basada en la interferometría Mach-Zehnder clásica, donde se introducen algunos aspectos novedosos tanto en el arreglo experimental cuanto en la adquisición y reducción de los datos, que facilitan el relevamiento de la curva concentración-posición.

En el presente trabajo, siguiendo un procedimiento similar al propuesto en la referencia 6 para la reducción de los datos, se introduce el uso de la interferometría por correlación de speckle digital, que si bien tiene una menor resolución espacial que la lograda por interferometría holográfica, tiene las ventajas de evitar el procesamiento fotográfico y presentar los datos en forma digital, lo que facilita la medición de la fase de las franjas de interferencia.

* Facultad de Ingeniería

II. DISPOSITIVO EXPERIMENTAL

El dispositivo experimental utilizado se esquematiza en la figura 1. La celda de difusión es un recinto de sección rectangular uniforme cuyas dimensiones son $12 \times 4 \times 0.95 \text{ cm}^3$, con la dimensión mayor en la dirección de difusión (vertical). El haz objeto es un haz paralelo que incide normal a la ventana de entrada, la cual es transparente, mientras que la de salida, paralela a la anterior, es difusora. El haz de referencia expandido incide sobre otro difusor

translúcido, colocado a 90° respecto de la ventana de salida. La luz dispersada por los difusores se superpone a la salida del interferómetro, gracias al divisor de haz colocado a 45° de ambos. La imagen del difusor es formada sobre el sensor CCD de la cámara, por medio del objetivo diafragmado a $f/5$, lo que produce un patrón de speckle cuyo tamaño de grano es similar al de los fotositos del sensor.

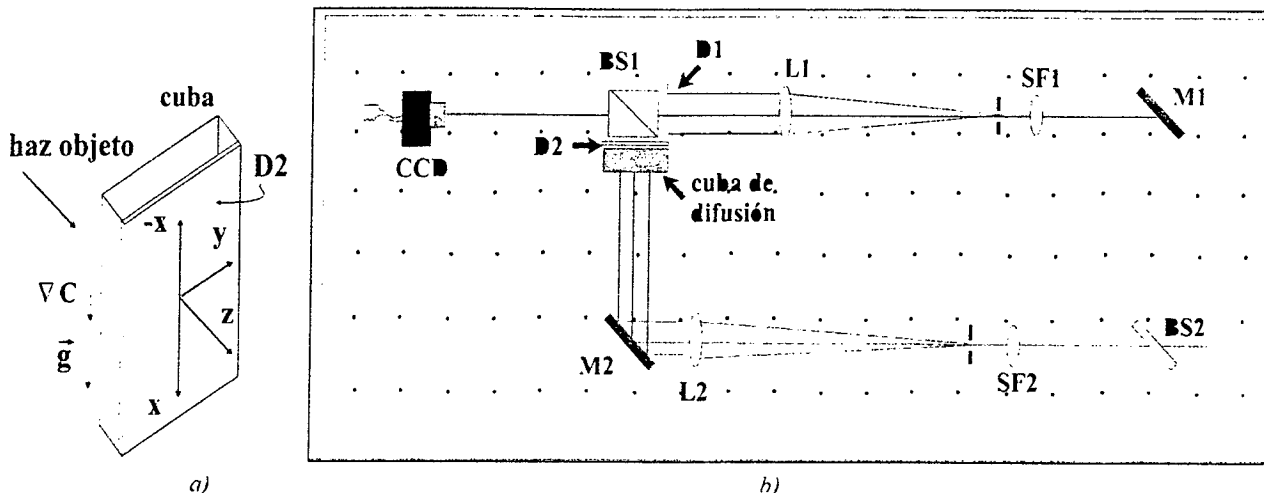


Figura 1: a) Cuba de difusión y sistema de coordenadas. b) Vista en planta del arreglo experimental. BS₁ y BS₂: divisores de haz; L₁ y L₂: lentes; SF₁ y SF₂: filtros espaciales; M₁ y M₂: espejos; D₁ y D₂: difusores; CCD: cámara digital.

La intensidad de los haces de referencia y objeto se regula para obtener una relación 5:1, con lo que se logra la mejor definición y contraste de las franjas de correlación. La ubicación del difusor en la ventana de salida, es una mejora respecto de los dispositivos utilizados por otros investigadores. De esta manera se logra una disminución importante de los efectos de la refracción debida al gradiente de índice de refracción, al quedar limitada la desviación de los rayos al pequeño recorrido dentro de la celda. La solución más concentrada (mayor densidad) se coloca en la parte inferior de la celda y la de menor concentración se vierte lentamente en la superficie libre de aquella de manera que se forma una interfaz, constituyendo este estado la condición inicial para el fenómeno de difusión del soluto.

III. MÉTODO DE MEDICIÓN Y RESULTADOS OBTENIDOS

Establecido el escalón de concentración, correspondiente al tiempo $t=0$, se permite evolucionar al sistema hasta un tiempo posterior t_1 en que se registra el patrón de speckle correspondiente. Se vacía la celda y se llena con solvente puro (en este caso agua destilada) registrándose un segundo patrón de speckle, que se resta digitalmente del anterior. Es decir, el estado correspondiente al tiempo t_1 se compara con un estado de referencia de concentración uniforme C_0 . La imagen resultante contendrá franjas de correlación de speckle a partir de las cuales se obtiene la distribución de concentración al tiempo t_1 .

Varias experiencias se realizaron con soluciones de NaCl en agua, a una concentración inicial $C_0 = 0,2$ molar y

distintas temperaturas. Una fotografía del interferograma correspondiente a una de ellas se muestra en la figura 2.

La franja de orden cero corresponde a la zona de solvente puro. Como el índice de refracción varía sólo en la dirección x , la ecuación para una franja brillante será

$$\Delta n(x, t_1) = n(x, t_1) - n_0 = N(x) \lambda / d, \quad (1)$$

donde Δn es la diferencia con respecto al índice de refracción, n_0 , del solvente puro, $n(x, t_1)$ es la distribución de índice de refracción al tiempo t_1 , $N(x)$ es el orden de interferencia, d el espesor de la celda y λ la longitud de onda. Algo muy importante a tener en cuenta es que el número total de franjas de correlación que aparecen en el interferograma depende del espesor de la celda y de la diferencia de índices de refracción correspondientes a las concentraciones extremas C y C_0 , en tanto que la separación entre ellas dependerá del tiempo t_1 , que da la extensión en x del gradiente de concentración. Estos parámetros y el aumento M que da el objetivo de la cámara, han de tenerse en cuenta en el diseño de la experiencia para asegurar que la CCD pueda resolver las franjas.

La variación de fase a la salida de la celda, $\Delta\phi(x, t_1)$, es proporcional a la variación de índice de refracción $n(x, t_1) - n_0$ y por ende a la distribución de concentración, $C(x, t_1)$, en el supuesto de que exista una relación lineal entre ambas magnitudes:

$$\Delta\phi(x, t_1) = (2\pi d / \lambda) \{n(x, t_1) - n_0\} = (2\pi d / \lambda) A C(x, t_1), \quad (2)$$

donde A es una constante.

Determinación de la fase

En este trabajo seguiremos el método de la transformada de Fourier, utilizado por otros autores^(8,9,10) para la

evaluación automática de patrones de interferencia. La intensidad registrada por la CCD (figura 2) puede ser escrita en la forma:

$$i(x,y) = a(x,y) + b(x,y) \cos(\phi(x,y)), \quad (3)$$

donde $a(x,y)$ representa las variaciones de intensidad de fondo, $b(x,y)$ está relacionado con las variaciones locales de contraste y $\phi(x,y)$ es la fase de interferencia que debe

ser determinada a partir de $i(x,y)$.

Llamando:

$$c(x,y) = 0,5 b(x,y) \exp[j(\phi(x,y))], \quad (4)$$

la ecuación (3) puede escribirse:

$$i(x,y) = a(x,y) + c(x,y) + c^*(x,y), \quad (5)$$

donde $j = \sqrt{-1}$ y c^* es el complejo conjugado de c . La transformada de Fourier de $i(x,y)$ puede expresarse:

$$I(u,v) = A(u,v) + C(u,v) + C^*(u,v). \quad (6)$$

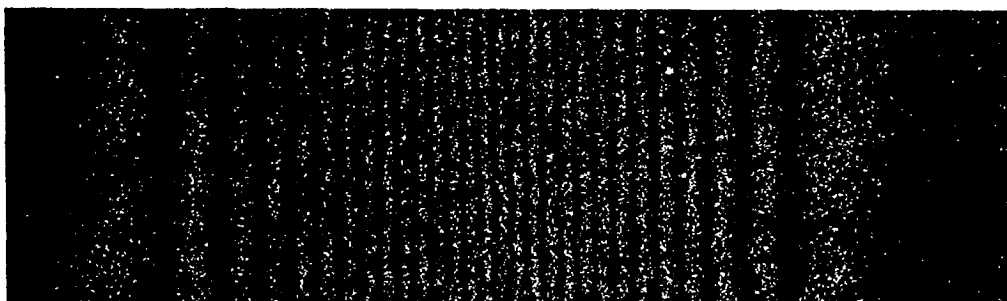


Figura 2: Franjas de correlación de speckle. La dirección normal a las franjas corresponde a la coordenada x.

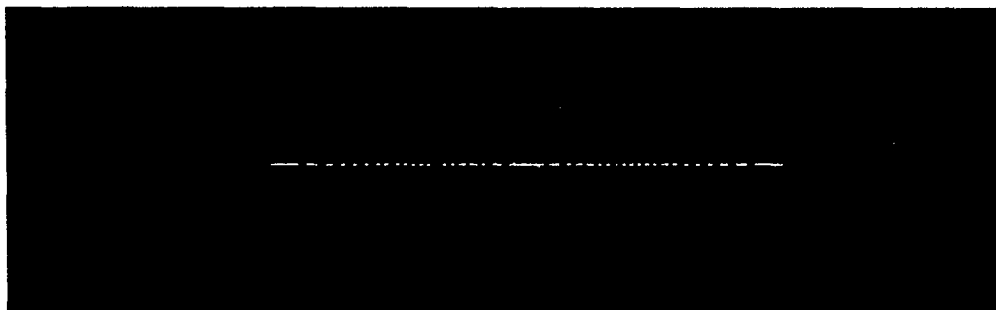


Figura 3: Transformada de Fourier bidimensional de las franjas de correlación de speckle

Dado que (5) es una función real, su transformada tendrá la parte real par y la parte imaginaria impar, por lo que la amplitud del espectro será simétrica respecto del origen. Aplicando un filtro pasabanda en el espacio de frecuencia es posible modificar el espectro para eliminar $A(u,v)$ (que contiene la parte continua y variaciones de muy baja frecuencia) y uno de los otros dos términos.

En la figura 3 se muestra la transformada de Fourier del interferograma de la figura 2 y en la figura 4 los valores correspondientes a la línea $(x,0)$, indicándose también el filtro aplicado (el ancho del filtro en la dirección y se tomó de 4 píxeles), con lo que queda sólo el término $C(u,v)$. Dado que el espectro así resultante no es simétrico, la transformada inversa será la función compleja, $c(x,y)$, de la que puede extraerse la fase, $\phi(x,y)$, como:

$$\phi(x,y) = \text{Im}\{c(x,y)\} / \text{Re}\{c(x,y)\}. \quad (7)$$

Desenvolvimiento de fase

La fórmula (7) da la fase módulo 2π en el intervalo $(-\pi, \pi)$ como se muestra en el mapa de fase de la figura 5.

La obtención de la distribución continua de fase se facilita en este caso por el hecho de saberse de antemano que es una función monótona creciente entre $C=0$ y $C=C_0$ por lo que puede utilizarse un método sencillo de recurrencia para su desenvolvimiento.

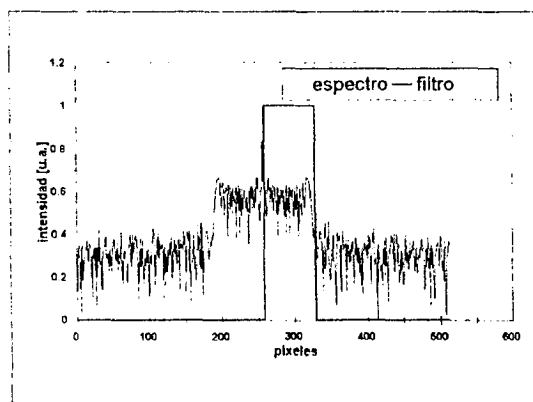


Figura 4. Espectro unidimensional y filtro aplicado.

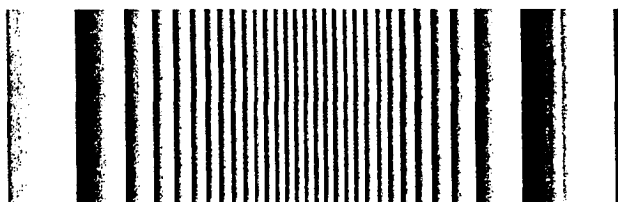


Figura 5. Mapa de fase módulo 2π

La fase desenvuelta se muestra en la figura 6, como función de la posición a lo largo de la celda de difusión.

El origen de coordenadas se ha tomado en la interfaz. Como la distribución es unidimensional, la información necesaria se obtiene de la curva correspondiente a la intersección de la superficie de fase con un plano $y=cte.$ que viene dada por la ecuación (2).

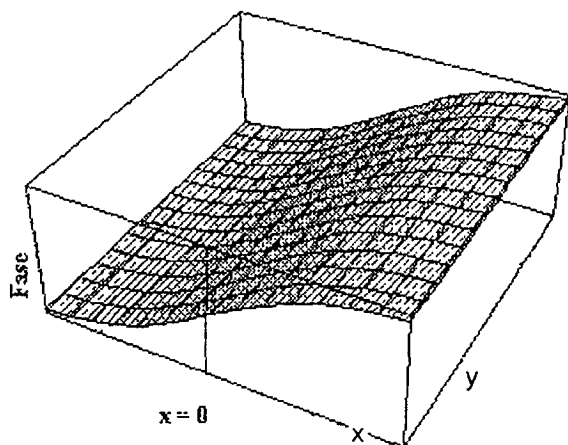


Figura 6. Distribución continua de fase

A fin de comparar la distribución experimental con la teórica, es conveniente normalizarla. Volviendo a la ecuación (2), se ve que:

$$\phi(x,t_1) = (2\pi d/\lambda) A C(x,t_1) = B C(x,t_1) \quad (8)$$

$$y \quad \{\phi(x,t_1)\}_{\max.} = B C_0, \quad (9)$$

donde B es una constante. Luego, la distribución de fase normalizada será:

$$\phi(x,t_1) / \{\phi(x,t_1)\}_{\max.} = C(x,t_1) / C_0. \quad (10)$$

Determinación del coeficiente de difusión, D

El proceso de difusión está gobernado por las leyes de Fick. La Segunda Ley de Fick, en el caso unidimensional, para D constante, viene expresada por la ecuación:

$$\frac{\partial C(x,t)}{\partial x} = D \frac{\partial^2 C(x,t)}{\partial x^2} \quad (11)$$

Su solución, con las condiciones iniciales establecidas para esta experiencia, $C=0$, para $x<0$ y $C=C_0$, para $x>0$, es la Función Error Complementaria

$$\frac{C(x,t)}{C_0} = 0,5 \operatorname{erfc}\left(\frac{x}{(4Dt)^{1/2}}\right). \quad (12)$$

Para las soluciones utilizadas, se ha verificado experimentalmente que la relación entre el índice de refracción y la concentración es lineal, en rangos de variación de la molaridad de unas décimas. En consecuencia, la distribución de fase normalizada, $\phi(x,t_1)$, en la dirección x de difusión y al tiempo t_1 , ecuación (10), vendrá dada por una curva afín a la correspondiente a la ecuación (12).

Para determinar el coeficiente de difusión D basta con calcular la Función Error Complementaria correspondiente al tiempo t_1 , transcurrido desde el inicio de la experiencia y compararla con la distribución normalizada de fase, ecuación (10). Como la curva teórica depende del valor de D , se parte de un valor arbitrario y se lo modifica hasta lograr el mejor ajuste entre las curvas teórica y experimental, con lo que se obtiene el mejor valor del coeficiente de di-

fusión. En la figura 7 se muestra la curva teórica así calculada, junto con algunos puntos correspondientes a la fase desenvuelta. No se dibujan todos los puntos por razones de claridad, ya que la superposición entre ambas curvas es muy marcada. En la Tabla I se muestran los resultados obtenidos para distintas temperaturas cuando se utiliza una solución de ClNa 0,2 molar que difunde en agua pura. Los valores concuerdan con los obtenidos por los autores utilizando otros métodos, descritos en las referencias 5,6 y 7 y con datos de las Critical Tables⁽¹¹⁾.

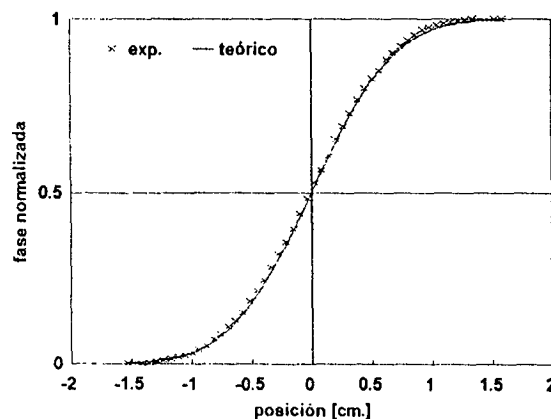


Figura 7. Curvas concentración posición teórica y experimental

TABLA I: VALORES EXPERIMENTALES DEL COEFICIENTE D OBTENIDOS PARA DIFERENTES TEMPERATURAS.

$D \times 10^{-9}$ [m ² /seg]	Temperatura [°C]
1,02	16,0
1,28	23,5
1,36	24,0

Referencias

- Jost, W., in "Diffusion in solids, liquids, gases". Academic Press Inc., Publishers. New York (1965).
- Gabelmann, L. Fenichel, H. Appl. Opt., **18**, (3), 343-345 (1979).
- Ruiz-Beviá, F. Celdrán-Mallol, A. Santos-García, C. Fernández-Sempere, J. Appl. Opt. **24**, (10), 1481-1484 (1985).
- Fernández, S., Ruiz-Beviá, F. Colom-Valiente and Más-Pérez, F. J.Chem. Eng. Data. **41**, 47 - 48 (1996).
- Alanís, E., Romero, G., Martínez, C. Energ. Renovables y Medio Ambiente **3**, 19 - 23 (1997).
- Alanís, E. Romero, G. Martínez, C. Anales AFA, **9**, (1997)
- Alanís, E. Romero, G. Martínez, C. y Alvarez, L. Actas LATCYM **98**, 2, 533 - 536 (1998)
- Takeda, M., Ina, H., Kobayashi, S. J. Opt. Soc. Am. **72**, 156-160 (1982).
- Macy, W. Appl. Opt. **22**, 3898-3901 (1983).
- Kreis, T. J. Opt. Soc. Am. A **3**, (6) 847-855 (1986).
- Bruins H. R. Coefficients of Diffusion in Liquids. Vol 5 in "International Critical Tables of Numerical Data. Physics, Chemistry and Technology". Mc Graw - Hill Bo. (1930).