

Aplicación De La Espectroscopía Óptica De Emisión En La Caracterización De Plasmas De Descargas Eléctricas En Tubos De Lámparas HPS Y Plasmas Láser En Aire

Rafael Sarmiento Mercado

*Grupo de Espectroscopía Óptica de Emisión y Laser, GEOEL
Universidad del Atlántico, Kilómetro 7 Vía a Puerto Colombia, A.A 1890, Barranquilla
rsarmiento@uniatlantico.edu.co*

RESUMEN

En este trabajo se presentan resultados del análisis de espectros de la radiación emitida por plasmas del tubo de una lámpara de sodio de alta presión, HPS (High Pressure Sodium) generados por descargas eléctricas en operación normal así como por descargas eléctricas pulsadas de alto voltaje. También se presentan resultados del análisis de espectros de la radiación emitida por plasmas en mezcla argón-aire generado por un laser pulsado. El análisis espectral incluyó la asignación de las líneas de los espectros a las distintas especies presentes en los plasmas. Con los parámetros espectrales se pudo estimar la temperatura y densidad electrónica de los plasmas en condiciones de Equilibrio Termodinámico Local, LTE. Para la obtención y procesamiento de los espectros se usó un espectrógrafo óptico equipado con redes de difracción y un detector optoelectrónico de arreglo lineal CCD. Los plasmas del tubo de la lámpara HPS se generaron en dos montajes eléctricos independientes: Uno con circuito de balasto conectado a la red de alimentación normal de 220 V AC y el otro sin balasto cuyos electrodos fueron conectados a una fuente capacitiva de alto voltaje a 3800 V. Los plasmas-laser en aire-argón fueron producidos por un laser de Nd: YAG a temperatura y presión ambiental y con una humedad relativa alrededor 50%. Los plasmas-laser en la mezcla argón-aire fueron generados en el interior de una cámara de vidrio con ventanas para la excitación laser y la observación del plasma, conectada a un sistema de evacuación. Los valores estimados de la temperatura y densidad electrónica del plasma para el tubo HPS en operación normal fueron de $\sim 3.5 \times 10^3$ K y de $\sim 7.5 \times 10^{14}$ cm⁻³, mientras que para el plasmas-laser mezcla aire-argón fueron de $\sim 40\ 500$ K y $\sim 8.3 \times 10^{14}$ cm⁻³.

Palabras Claves: Espectroscopía Óptica, Plasmas LTE, HPS, Plasma-laser aire argón.

ABSTRACT

In this work present results of the analysis of spectra of radiation emitted by plasmas of tube of lamp high-pressure sodium, HPS (High Pressure Sodium) generated by electric discharges to normal operation as well as pulsed electric discharges of high voltage. Too presents results of the analysis of spectra of radiation emitted by plasmas in argon-air mixture generated by a pulsed laser. The analysis included the assignments of spectral lines in the spectra of the various species present in plasma. With the spectral parameters were able to estimate the temperature and electron density of plasmas in a Local Thermodynamic Equilibrium, LTE. For obtaining and processing the spectra was used a spectrometer equipped with the optical grating diffraction and a optoelectronic detector linear array CCD. The plasma of tube lamp HPS were generated in two separate electrical configurations: One with ballast circuit connected to the power normal 220 V AC and the other without ballast whose electrodes were connected to a capacitive power of high voltage to 3800 V. Plasma-laser air-argon were produced by a laser Nd: YAG to environmental pressure and temperature and relative humidity around 50%. The plasmas-laser in the air-argon mixture was generated inside the chamber with glass windows to the laser excitation and observation of the plasma, connected to an evacuation system. The estimated values of the electron temperature and density of the plasma tube for HPS in normal operation were $\sim 3.5 \times 10^3$ K and $\sim 7.5 \times 10^{14}$ cm⁻³, while for the plasma-laser air-argon of mixture were $\sim 40\ 500$ K and $\sim 8.3 \times 10^{14}$ cm⁻³.

Keywords: Optical spectroscopy, Plasma LTE, HPS, Plasma laser air-argón.

1. INTRODUCCIÓN

La Espectroscopía Óptica de Emisión, OES, es un área de las ciencias físicas y químicas bien establecida cuyas técnicas no invasivas son ampliamente usadas para el diagnóstico de plasmas¹⁻³. La radiación proveniente de los plasmas que se hace pasar directamente a un sistema dispersivo, produce un espectro que proporciona abundante e importante información espectral acerca de la estructura de átomos neutros excitados o ionizados en el plasma. Después de un análisis espectral apropiado que incluye el cálculo de diversos parámetros energéticos y su interpretación, estos pueden ser utilizados para caracterizar los plasmas y los procesos que en ellos ocurren⁴.

Los plasmas en tubos de lámparas de sodio de alta intensidad y presión (HPS) así como los plasmas-laser en aire y gases son ejemplos de plasmas donde prevalecen condiciones transitorias de Equilibrio Termodinámico Local, LTE. Bajo estas condiciones se pueden aplicar diversos criterios y métodos que permiten estimar parámetros del plasma como la temperatura y densidad electrónica. Algunas de las fórmulas ampliamente usadas para el cálculo de estos parámetros son la relación de intensidades relativas de dos líneas atómicas aisladas y el ensanchamiento por efecto Stark¹⁻³.

$$\frac{I_{mn}}{I_{pn}} = \frac{A_{mn} g_m \lambda_{pn}}{A_{pn} g_p \lambda_{mn}} \exp\left(\frac{E_m - E_p}{kT}\right) \quad (1)$$

Donde I es la intensidad (integrada sobre el perfil), λ la longitud de onda de cada línea, g peso estadístico y E la energía de los niveles superiores de la transición y A la probabilidad de transición espontánea.

$$\Delta\lambda_{1/2} = 2W \left(\frac{N_e}{10^{16}}\right) + 3.5 A \left(\frac{N_e}{10^{16}}\right)^{5/4} \left[1 - \frac{3}{4} N_D^{-1/3}\right] W \quad (2)$$

Aquí $\Delta\lambda_{1/2}$ es el ensanchamiento Stark total a la mitad de la altura del perfil de la línea considerada (FWHM). El primer término y más significativo contiene la contribución electrónica. W representa el ancho del parámetro de impacto del electrón, el cual se encuentra tabulado para algunos elementos a determinadas temperaturas. Para los cálculos realizados no se tuvo en cuenta el segundo término que representa la contribución al ensanchamiento Stark debido al impacto iónico^{1,2}.

Para el análisis e interpretación de los espectros se hicieron cálculos de parámetros espectrales atómicos tipo Hartree-Fock no relativista, HF, utilizando el paquete de programas de R. D. Cowan⁴, los cuales fueron comparados con los datos reportados en la base de datos del NIST⁵.

Diversos estudios sobre las lámparas de alta presión de sodio, HPS, que incluyen análisis de los espectros han sido reportados por diferentes autores⁶⁻¹⁷. Distintas características y parámetros que incluyen desde la influencia de los parámetros eléctricos de operación de una lámpara HPS sobre la temperatura electrónica del plasma en el tubo, variación de los espectros en el tiempo, tipo de alimentación de la lámpara hasta el fenómeno de autoabsorción en la región del doblete D del sodio han sido reportados^{8,10,14,17}. Medidas de ensanchamiento y corrimiento Stark también han sido reportadas sobre líneas de transiciones espectrales en sodio a partir del espectro de una lámpara HPS^{12,13}.

La Espectroscopía de Plasma Producido por Laser (Laser-Produced Plasma Spectroscopy, LPPS), como técnica analítica, ha evolucionado rápidamente debido a su gran versatilidad frente a otras técnicas y variedad de aplicaciones en distintas muestras utilizando lasers de mediana y alta potencia. Mediante éstos es posible generar plasmas en muestras sólidas, líquidas o gaseosas¹⁸⁻²⁰. Distintos estudios de plasmas-laser en aire y otros gases (helio, argón, nitrógeno) reportan la determinación de temperatura y densidad electrónica²¹⁻²⁴.

El análisis de los espectros de la lámpara HPS funcionando en modo normal permitió estimar valores de temperatura y densidad electrónica del plasma de $\sim 3.5 \times 10^3$ K y de $\sim 7.5 \times 10^{14}$ cm⁻³, respectivamente. Igualmente se reportan valores estimados de temperatura y densidad electrónica para plasma-laser en mezcla aire-argón, utilizando los métodos descritos anteriormente, obteniéndose valores de $T_e \sim 4.0 \times 10^4$ K y de $N_e \sim 8.3 \times 10^{14}$ cm⁻³.

2. DESCRIPCIÓN EXPERIMENTAL

Los espectros de los plasmas del tubo de la lámpara HPS y de los plasmas-laser aire, argón y mezcla argón-aire, fueron adquiridos en la región espectral de 250 a 850 nm y procesados con técnicas de la Espectroscopía Óptica de Emisión

(OES). La radiación emitida por los plasmas del tubo HPS fue enfocada directamente sobre la rendija de entrada de un espectrógrafo óptico MS260i, montaje Czerny-Turner (resolución espectral 0.30 nm, precisión en longitud de onda 0.08 nm, con red de difracción de 1200 ranuras/mm en primer orden de difracción), equipado con redes de difracción de 600 y 1200 ranuras/mm y con un arreglo lineal CCD de 2048 pixeles con respuesta espectral 200-1100 nm. Para la adquisición y procesamiento de los espectros se utilizó el software SpectraArray^{25,26}.

El tubo espectral utilizado es el de una lámpara comercial de sodio de las llamadas HPS de 70 W- E27, con medidas de 60 mm de largo y 4 mm de diámetro interno, hecho en cerámica de alúmina policristalina de alta densidad (PCA), altamente resistente al calor y a la corrosión y traslucido a la radiación visible. Las lámparas de sodio HPS clasificada en la categoría de lámparas de descargas⁷, operan normalmente con descarga de arco generadas dentro del tubo a través de un circuito regulador con balasto que permite su encendido, mantenimiento de la frecuencia de la red de alimentación a 60 Hz y un voltaje de operación que se mantiene constante cuando la lámpara se estabiliza después de cierto tiempo del encendido. Las descargas en el tubo de la lámpara fueron generadas de dos formas: 1) con descarga normal de operación a través de su circuito con balasto conectado a la línea de alimentación de 220 V y 2) mediante descargas eléctricas pulsadas de alto voltaje a 3,8 kV en el tubo sin balasto generados por una fuente capacitiva descrita anteriormente²⁷. En la descarga normal de la lámpara HPS se tomaron espectros al encenderla y a distintos tiempos de funcionamiento hasta su estabilización. Como espectros de calibración y comparación se tomaron los de una lámpara de sodio de baja presión, LPS, y de una lámpara de Hg/Ar.

Los plasmas-laser en aire, argón y mezcla argón-aire fueron generados con un laser Q-Switched de Nd: YAG, modelo Tempest 10, operando en el segundo armónico a 532 nm, con energía máxima por pulso de ~100 mJ, duración del pulso entre 3 y 5 ns. Los plasmas-laser en aire fueron formados a temperatura y presión ambiente y humedad relativa alrededor de 50%. Los plasmas-laser de argón y mezcla de argón-aire fueron producidos dentro de una cámara de vidrio en forma de cruz con ventanas de vidrio para la excitación y de sílice fundida grado UV para observación y toma de la radiación del plasma, conectada a una línea de vacío. Para ambos montajes experimentales la radiación del laser fue enfocada con una lente plano convexa de 10 cm de distancia focal. La radiación de los plasmas fue enfocada a su vez con una lente convergente sobre el extremo de una fibra óptica QP400-2 grado UV/VIS y conducida a la rendija de entrada del espectrógrafo. Para la calibración espectral se usó una lámpara de Hg/Ar, modelo HG-1, que emite líneas de mercurio y argón entre 253 y 922 nm. Para el análisis e interpretación de los espectros se realizaron cálculos de parámetros energéticos atómicos tipo Hartree-Fock, no-relativista utilizando el paquete de programas desarrollado por R. D. Cowan⁴ y comparación de resultados con la base de datos del NIST⁵.

3. ANÁLISIS Y RESULTADOS

Plasma del tubo de una lámpara HPS: Los espectros del plasma de tubo de la lámpara HPS presentan una gran dinámica así como gran información espectral: la forma y líneas del espectro cambian con el tiempo desde el encendido hasta su estabilización. Al encenderse la lámpara aparecen casi instantáneamente algunas líneas intensas del gas o los gases que sirven para facilitar el encendido, pero que luego van decayendo rápidamente al tiempo que van apareciendo algunas líneas del sodio cuya intensidad, anchura y forma crecen hasta el régimen estabilizado de la lámpara. Otros fenómenos importantes observados en los espectros de las lámparas HPS son: una fuerte autoabsorción alrededor del intenso doblete D en el espectro de Na I¹⁷ (588.970 nm y 589.629 nm), que ocurre por absorción resonante por parte de átomos no excitados de sodio; medidas del ancho de la autoabsorción fue del orden de 1.64 nm. Igualmente se alcanza a observar un pequeño corrimiento hacia el azul en la línea de referencia 330.227 nm del espectro de una lámpara calibrada LPS (Low Pressure Sodium); en el espectro de la lámpara HPS aparece medida en la posición de 330.000 nm y además aparece el otro pico a 330.319 nm cuya separación es mucho mayor al valor reportado⁵. El otro fenómeno observado se relaciona con el ensanchamiento de las líneas del espectro HPS respecto de las mismas líneas del espectro de la lámpara LPS; este ensanchamiento total es debido en parte al efecto Stark causado por electrones, autoensanchamiento originado por átomos neutros de sodio y ensanchamiento de van der Waals por causa de átomos de otras especies presentes en el interior del tubo las cuales se ponen de manifiesto en el espectro de encendido de la lámpara. Con la medida de las líneas 364.822 nm y 404.989 nm de Hg I presentes en el espectro de la lámpara HPS estabilizada, se estimó un valor de temperatura electrónica del plasma bajo consideración de LTE empleando la relación (1) de $T_e = 3512 \text{ K} \approx 3.5 \times 10^3 \text{ K}$. Con este valor aproximado de la temperatura del plasma se estimó la densidad electrónica utilizando datos de Griem¹ y ensanchamiento Stark de las líneas 615,900 nm y 616.552 de Na I, obteniéndose un valor promedio de

$7.5 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$.

Con el objetivo de investigar los componentes dentro del tubo, se tomaron espectros de la lámpara HPS desde su encendido hasta su estabilización (~10 minutos), como también conectando el tubo sin balasto a una fuente pulsada conmutada a un voltaje de 3800 V. Los espectros HPS al inicio de la descarga muestran líneas de Hg I así como algunas líneas coincidentes con el espectro del Xe I. Mientras que el espectro con descarga pulsada muestra muchas líneas coincidentes con el espectro de Na II, como se muestra en la Figura 1.

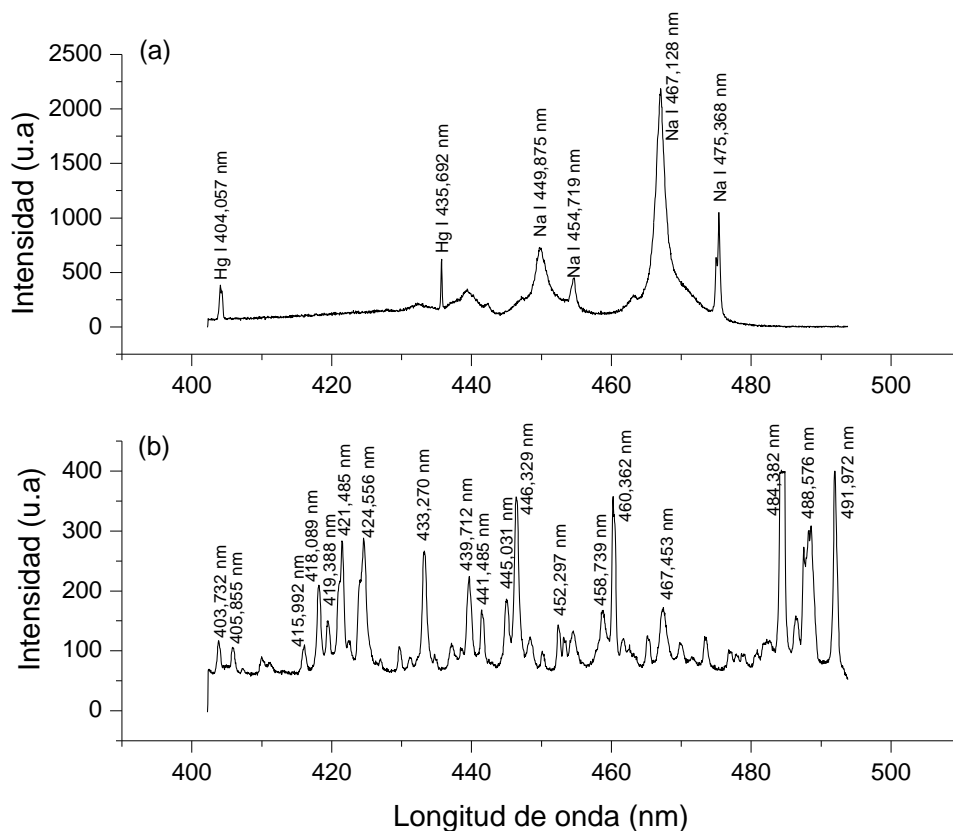


Figura 1. Espectros del tubo de la lámpara HPS centrado en 449.998 nm. (a) Descarga normal estabilizada (b) Descarga pulsada a 3800 V.

Plasma-laser mezcla aire-argón: Los espectros de los plasmas-laser en aire se obtuvieron de una mezcla de argón-aire dentro de una cámara de vidrio. En los espectros de plasma-laser de la mezcla aire-argón se observaron líneas pertenecientes a N I, N II, O I, Ar I y Ar II. Algunas líneas de las transiciones en 500.435 nm, 567.849 nm, 777.365 nm, 819.107 nm no fueron resueltas en los espectros registrados y no tenidas en cuenta en los cálculos. Para la mayoría de las líneas de los espectros se observó que están corridas hacia el rojo con respecto a las líneas reportadas en el NIST⁵. Suponemos que éste corrimiento de las líneas es debido a efecto Stark (Shift Stark) producido por la alta intensidad del campo eléctrico del haz laser. Para el cálculo de la temperatura electrónica del plasma-laser en mezcla aire-argón se utilizó la relación (1) para las líneas medidas en 840.831 nm y 842.478 nm del espectro de Ar I, y los datos espectrales reportados en la base de datos del NIST⁵, se obtuvo un valor estimado de la temperatura electrónica del plasma de $T_e = 40\ 500$ K. Con este valor y los datos reportados¹ para la línea 746.903 nm de N I, se utilizó la ecuación (2)

estimándose un valor de la densidad electrónica de $\text{Ne} = 8.3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$. Estos resultados concuerdan con los datos reportados en otros trabajos²¹⁻²⁴.

4. CONCLUSIONES

Se obtuvieron espectros de la radiación emitida por el plasma del tubo de una lámpara HPS conectado a dos circuitos de alimentación independientes: 1) Con balasto a la red de alimentación de 220 V AC; para esta configuración se obtuvieron espectros que cambian desde su encendido hasta su estabilización. Al inicio de la descarga los espectros muestran líneas intensas pertenecientes a Hg I y Xe I que decaen rápidamente, al tiempo van apareciendo líneas de Na I (~90s). El análisis de estos espectros revela una fuerte autoabsorción en la transición resonante del Na I ($3p \ ^2P_{1/2,3/2} \rightarrow 3s \ ^2S_{1/2}$), así como corrimiento y ensanchamiento Stark. 2) Sin balasto a una fuente pulsada conmutada de alto voltaje a 3800 V; para esta configuración la medida inicial de los espectros muestran líneas intensas coincidentes con el espectro de Na II. Los valores estimados de temperatura y densidad electrónica del plasma para el tubo HPS en descarga normal utilizando los métodos descritos fueron respectivamente de $\sim 3.5 \times 10^3 \text{ K}$ y de $\sim 7.5 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$.

En los espectros de plasma-laser en la mezcla aire-argón se observaron y midieron líneas pertenecientes a N I, N II, O I, Ar I y Ar II. Las líneas de las transiciones N II (500.435 nm, 567.849 nm), O I (777.365 nm), N I (819.107 nm) no fueron resueltas. Para la mayoría de las líneas de los espectros se observó un corrimiento hacia el rojo con respecto a los valores de las mismas líneas reportadas en el NIST⁵. Suponemos que éste corrimiento de las líneas es debido a efecto Stark (Shift Stark) producido por la alta intensidad del campo eléctrico del haz laser. Para este plasma se determinaron valores estimados de temperatura electrónica de $\sim 40 \text{ 500 K}$ y de densidad electrónica de $\sim 8.3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$.

AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen a la Vicerrectoría de Investigaciones, Extensión y Proyección Social, al Departamento de Postgrado de la Universidad del Atlántico y a la Junta Ciudadela Universitaria del Atlántico por el apoyo brindado en el desarrollo de esta investigación.

REFERENCIAS

1. Hans R. Griem, *Plasma Spectroscopy*, Edit. Mc Graw-Hill, N.Y, 1965.
2. Hans R. Griem, *Spectral Line Broadening by Plasmas*, Academic Press, 1974.
3. A. Thorne, U. Litzén and S. Johansson, *Spectrophysics: Principles and Applications*, Springer, 1999
4. R. D. Cowan, *The theory of atomic structure and spectra*, University of California Press, 1981.
5. NIST. *Atomic spectra database lines data*: http://physics.nist.gov/physRefData/ASD/lines_form.html
6. J. J. de Groot and J. A. J. M. van Vliet, *The High-Pressure Sodium Lamp*, Philips Technical Library, Kluwer, Deventer, 1986
7. G. G. Lister, J. E. Lawler, W. P. Lapatovich, and V. A. Godyak, "The Physics of Discharge Lamps", *Rev. Mod. Phys.* **76**, pp. 501-598, 2004
8. A. Martin, et-al, "Propiedades físicas básicas de una lámpara de Na de alta presión a diversos voltajes y frecuencias", *Óptica Pura y Aplicada*, **37**, pp. 103-110, 2004
9. R. Geens and E. Wyner, "Progress in high pressure sodium lamp technology", *IEE Proceedings*, **140**, pp. 450-463, 1993
10. A. Martin, et-al, "Comparison of the emission of a high pressure Na lamp working at 50 Hz and at high frequency", *IEEE*, pp. 1660-1666, 2004
11. Yu-Min Chien and Lin-Tang Chen, "Resonance radiation power from a high-pressure sodium lamp", *J. Phys. D: Appl. Phys.* **15**, pp. 775-783, 1982
12. Ž. Mioković and D. Veža, "The line shape of sodium $n \ ^2S_{1/2} - 3 \ ^2P_{1/3,3/2}$ transitions in Na-Cd high pressure discharge", *Fizika A*, **10**, pp. 129-140, 2001
13. Ž. Mioković, D. Balković and D. Veža, "Shift and broadening of sodium nS-3P and mD-3P transitions in high pressure NaCd and NaHg discharges", *Fizika A*, **14**, pp. 135-152, 2005
14. A. Chammam, et-al, "Effect of a pulsed power supply on the spectral and electrical characteristics of HID lamps", *J. Phys. D: Appl. Phys.* **38**, pp. 1170-1177, 2005

-
15. M. Weiß, et-al, "Determination of line broadening constants in high pressure discharge lamps", *J. Phys. D: Appl. Phys.* **38**, pp. 3170-3174, 2005
 16. M. Kettlitz and R. Großjohann, "On the plasma constriction close to the electrodes of high-pressure mercury and sodium lamps", *J. Phys. D: Appl. Phys.* **35**, pp. 1702-1706, 2002
 17. N. Bandera, et-al, "Características espectrales de la radiación emitida por una lámpara HID de Na", *Rev. Col. Fis.* **40**, pp. 447-449, 2008-09-29
 18. L. Radziemski and D. Cremers, *Laser-Induced Plasma and Application*, Edit. Dekker, 1989
 19. A. Miziolek, V. Palleschi and I. Schechter, *Laser Induced Breakdown Spectroscopy*, Edit. Cambridge, 2006
 20. L. Radziemski and D. Cremers, *Handbook Laser-Induced Breakdown*, Edit. John Wiley & Sons, 2006
 21. M. Hanafi, M. M. Omar, Y.E.E-D. Gamal, "Study of laser-induced breakdown spectroscopy of gases", *Radiation Physics and Chemistry*; **57**, pp. 11-20, 2000
 22. Tran X. Phuoc. "An experimental and numerical study of laser-induced spark in air". *Optics and Laser in Engineering*; **43**, 113-129, 2004
 23. Ş. Yalçın, et-al, "Influence of ambient conditions on the laser air spark", *Applied Physics B: Laser and Optics.* **68**, pp. 121-130, 1999
 24. L. Cadwell, L. Hüwel, "Time-resolved emission spectroscopy in laser-generated argon plasma-determination of Stark broadening parameters", *J. of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, **83**, 579-589, 2004.
 25. Manual User, Newport Oriel Instruments, "MS260i Imaging Spectrograph", Stanford, CT 1998.
 26. Manual User, Spectra-Physics, "Spectroscopic data acquisition and display software for linespec ccd detector".
 27. J. C. Álvarez, J. E. Molina, R. Sarmiento, *Rev. Col. Phy.* **38**, pp. 834-837, 2006