EMISSÃO E ABSORÇÃO RESSONANTE DE RAIOS GAMA SEM RECUO OU EFEITO MOSSBAUER

Odimar Deusdara Rodrigues

Departamento de Engenharia Rural - Universidade Federal do Espírito Santo

Vijayendra K. Gary

Departamento de Física e Química - Universidade Federal do Espírito Santo

## Introdução

No período anterior a 1958 acreditava-se que a emissão de fóton pelo átomo ou núcleo deveria inevitavelmente ser acompanhada de recuo do átomo envolvido. Estudando o espalhamento nuclear, Rudolf L. Mossbauer fez a importante descoberta de que um átomo, quando preso numa rede cristalina, pode emitir ou absorver determinado tipo de radiação (radiação gama) sem perda de energia associada ao recuo. O momento, nesse caso, é absorvido pelo cristal como um todo, sendo desprezível a perda de energia de recuo. O que distingue os experimentos de Mossbauer dos experimentos de fluorescência em gases é que os núcleos (átomos) que emitem (emissores ou fontes) e os que absorvem (absorvedores) não são livres, mas estão presos num cristal.

A maioria das aplicações do efeito Mossbauer é devida à extre ma seletividade, o que torna possível detectar variação muito pequena na energia da radiação envolvida. Quando a incerteza da energia de recuo é removida da emissão e absorção da radiação gama, as larguras de linhas do raio gama tornam-se tão estreitas que é possível realizar experimentos antes não sonhados. Larguras de linhas típicas são reduzidas por um fator de 106.

Vamos aqui descrever o efeito Mossbauer, bem como os passos necessários ao seu entendimento. Indicaremos, também, os ramos da ciência em que ele é aplicado.

## II. Absorção Ressonante

Como o efeito Mossbauer envolve uma emissão sem recuo e uma absorção ressonante de raios gama nuclear, é de suma importância que estes dois fenômenos fiquem bem esclarecidos. Inicialmente veremos a ressonância acústica que pode ser obtida através de dois diapasões ten do a mesma frequência (fig. 1).

Se um deles é posto para vibrar, o outro também começará a vibrar, porque é impulsionado pelas ondas de som emanadas do primeiro diapasão, isto é, o primeiro leva o estado fundamental do segundo dia pasão ao estado excitado que logo cai para o fundamental assim que ene começa a vibrar. Se os dois não estão sintonizados na mesma frequência (isto pode ser verificado, fazendo ambos vibrarem e ouvindo a nota do batimento) a ressonância será tão pequena que não poderá ser observada ou melhor dizendo, não haverá ressonância.

Veremos agora a ressonância ótica que foi obtida por R.W. Wood no início deste século em sistemas atômicos, onde foi observado que os átomos se comportam como osciladores de frequências perfeitamente definidas nos processos de emissão e absorção da luz. Wood usou a luz amarela emitida pelos átomos de sódio correspondendo às linhas D, ob tidas pela introdução de sal de cozinha numa chama. Cada uma das linhas do átomo de sódio possui um comprimento de onda e frequência definidos correspondendo a sua frequência natural de vibração, ou de uma maneira mais precisa, à frequência natural de vibração dos elétrons mais externos do átomo de sódio. Para demonstrar a ressonância é necessário usar outros átomos de sódio, mas estes não são queimados na chama (fig.2). Wood usou um bulbo de vidro contendo uma pequena quan tidade de sódio metálico fazendo vácuo em seguida. Quando o bulbo é aquecido acima da temperatura ambiente ficará cheio de vapores de sódio, devido à sua pressão de vapor, necessário para o experimento. Quan do a luz da chama de sódio é focalizada no bulbo, observar-se-á um tê nue brilho no mesmo. Os átomos de sódio do bulbo estão se comportando de maneira análoga ao segundo diapasão. Eles estão absorvendo energia do feixe de luz amarela incidente e irradiando em todas as direções. Se outros átomos que não estão "sintonizados" nas linhas do sódio são colocados no bulbo, nenhum brilho é observado.

Uma comparação da luz que passou pelo bulbo com aquela que vem diretamente da fonte (chama + sal) mostra que o resultado da passagem pelo vapor de sódio não é simplesmente enfraquecer as linhas D do sódio, mas reduzir a intensidade de seus picos sem afetar seus lados. Este efeito acontece por causa da diferença de temperatura entre os átomos da chama e os do bulbo. Como os átomos na chama movem-se muito rápido, a luz que eles emitem é alargada pelo efeito Doppler. Os átomos mais frios no bulbo absorvem somente a porção central da linha. Este experimento demonstra claramente a alta seletividade do processo de ressonância.

Finalmente, chegamos ao caso de ressonância nuclear, este fenômeno toma parte no efeito Nossbauer. A excitação de um átoro do seu estado fundamental para um estado excitado, fig. 2, pela absorção de um fóton é um evento altamente provável se a energia do fóton co misde exatamente com um dos níveis de energia do átomo. Se o átomo excitado volta para o estado original pela emissão do fóton que absorveu, o processo de desexcitação é chamado espaihamento ressonante ou fluorescência ressonante atômica. Os fótons absorvidos pelos átomos podem originar-se de outros átomos idênticos áqueles que foram excitados, ou podem vir de uma fonte de fótons com espectro de energia contínua.

O caso de fluorescência ressonante nuclear é similar ao de fluo rescência atômica. Um núcleo, no estado fundamental, pode absorver radiação gama se a energia do raio gama for exatamente igual à energia do estado excitado E que, subsequentemente, decai de novo para o estado fundamental, com emissão de radiação fluorescente. Em geral a e nergia de estado excitado é bem definida, isto é, a largura do nível é bem estreita (muito pequena) (fig. 3). Por causa disso, as linhas gama de absorção são geralmente muito estreitas e, se a fonte emite rai os gamas, espectro de energia contínuo, pouca radiação pode ser absorvida. Esso dificulta a detecção do processo de fluorescência nuclear.

Entretanto, se os raios gama a serem absorvidos são fornecidos por núcleos idênticos aos que absorvem os raios gama, o processo de absorção com reemissão é muito mais intenso do que no caso de fonte de raios gama de espectro de energia contínuo. A única complicação é que a energia de recuo do núcleo que emite o raio gama (núcleo excitador) introduz um deslocamento na energia do raio gama que pode fazer com que este não tenha mais a energia suficiente para excitar o núcleo absorvedor, isto é, a energia do raio gama excitante difere da energia ressonante do núcleo absorvedor.

# III. Fatores Responsáveis pela Ressonância

Antes do trabalho de Mossbauer, a análise da cinemática da emissão de raio gama era feita para o caso de um átomo ou núcleo livre. Consideremos, então, um sistema livre (atômico ou nuclear) de massa. M com dois estados. A e a separados por uma energia. E o sistema emissor movendo com uma velocidade. V, de maneira que o momento do sistema é MV (fig. 4). Depois da emissão do raio gama, suposto na direção do eixo dos x, o momento do sistema, agora compreendendo o raio gama mais o do núcleo desexcitado, deve ser igual a MV; isto é, o momento do raio gama, E / c, deve ser equilibrado pela mudança da velocidade do núcleo (é suposto que a velocidade de recuo do átomo ou núcleo é suficientemente pequena para fazermos o tratamento não relativístico).

Igualando as componentes do momento antes e depois da emissão

do raio gama, temos

$$H V_{x} = E_{y}/c + H(V_{x} + V)$$

$$H V_{y} = H V_{y}$$

$$H V_{z} = H V_{z}$$

$$(1)$$

Daqui concluimos que a velocidade de recuo, v, é igual a-E,/Mc e é independente da velocidade inicial do sistema. É também instrutivo observar a conservação da energia. Antes da emissão do raio gama, o átomo ou núcleo está num estado excitado com energia  $E_0$ , e tem energia cinética  $1/2 \ M(V_X^2 + V_Z^2 + V_Z^2)$ . Depois da emissão existe um raio gama de energia  $E_1$  e um átomo ou núcleo com energia cinética  $1/2 \ M[(V_X + V)^2 + V_Z^2]$ :

$$E_{o} + 1/2 M(V_{x}^{2} + V_{y}^{2} + V_{z}^{2}) = E_{\gamma} + 1/2 M [(V_{x} + v)^{2} + V_{y}^{2} + V_{z}^{2}]$$
 $E_{o} - E_{\gamma} = 1/2 M v^{2} + M v V_{x}$ 
 $E_{o} - E_{\gamma} = E_{r} - E_{\gamma} V_{x}/c$ 

onde

$$E_r = 1/2 \text{ M v}^2 = E_{\gamma}^2/2 \text{ M c}^2$$

como 
$$E_{\gamma} < E_{o}$$
 ,  $E_{r} \ge E_{\gamma} V_{x}/c$  e  $E_{r} << E_{o}$  teremos 
$$E_{r} \simeq E_{o}^{2}/2 \ M \ c^{2} \ \ (2)$$

A diferença  $E_0$  -  $E_\gamma$  entre a transição atômica ou nuclear  $E_0$  e a do raio gama  $E_\gamma$  consiste da energia de recuo do sistema ,  $E_r$  , que é independente da velocidade inicial, mais um termo linear na velocidade que é o efeito Doppler (este termo é no máximo igual à energia de recuo como veremos mais tarde). A velocidade ao acaso devido à temperatura dos átomos em um gás, fig. 7, produz um alargamento (alargamento Doppler) no espectro do raio gama de uma quantidade  $E_D$  =  $2(E_k T)^{1/2}$ , proporcional à velocidade quadrática média.

O átomo ou núcleo que absorve o raio gama (absorvedor) também

possul uma energia de recuo E Levando isso em conta, a energia E' o disponível para excitação do nível no átomo ou núcleo absorvente fica:

$$E_{0}^{\prime} = E_{\gamma} - E_{\gamma} \tag{3}$$

Devido à energia de recuo do átomo ou núcleo emissor e do efe<u>i</u> to Doppler (quando o emissor se aproxima do absorvedor no momento que o raio gama é emitido com energia E<sub>Y</sub> então este efeito introduz um deslocamento na energia do raio gama em direção ao valor ressonante E<sub>O</sub>, e utiliza-se o efeito Doppler para restaurar as condições de ressonância), o deslocamento total da energia em relação à ressonante é

$$E_{o} - E_{c}' = 2E_{r} - E_{y} V_{x}/c$$
 (4)

Vejamos então as condições da absorção ressonante:

1) Se 2E é maior do que a largura natural,  $\Gamma$ , do nível a ser excitado, fig. 5.d, então o sistema fica fora da ressonância , a probabilidade de absorção pela ressonância cai a zero e o efeito não pode ser medido. Se a largura do nível  $\Gamma$  é grande, comparada ao valor  $2E_{\Gamma}$ , a energia  $E_{O}$  se sobrepõe ao nível  $E_{O}$  e a excitação pelo processo de fluorescência ressonante se torna possível, ou seja,

Todavia, um fator entra agora em discussão com a introdução da largura do estado excitado β. Supondo que a vida média do estado seja τ. e de acordo com o princípio de incerteza de Heisenberg, a energia no estado excitado β não pode ser exatamente medida, mas somente dentro de uma incerteza dada por

onde 211h é a constante de Planck. De acordo com esse princípio o de caimento do estado B não pode mais ser caracterizado por uma energia bem definida E o , mas por uma energia E distribuida em torno da energia E como mostra a fig. 5.a. Como o estado fundamental é estável, de acordo com eg.(6) sua energia é bem definida.

2) Para os inúmeros núcleos que possuem estados excitados de largura Γ pequena comparada com 2E<sub>Γ</sub>, há um método para superar a mpossibilidade de medir o efeito de fluorescência ressonante. Consi<u>s</u> te ele em colocar o emissor em movimento em relação ao absorvedor e <u>u</u> tilizar o efeito Doppler para restaurar as condições de ressonância. Para assegurar a volta das condições de ressonância devemos fazer o deslocamento total da energia,

$$E_0 - E_0^{\dagger}$$
, em eq. (6) igual a zero  
 $E_V^2/\text{M c}^2 - E_V^2/\text{c} = 0$ 

ou

$$V_{\chi} = E_{\gamma}/H c$$
 (7)

A velocidade necessária é justamente igual à velocidade de recuo,  $E_{\gamma}/M$  c. Para o isótopo Au<sup>198</sup> usado por P.B. Moon (1951) a velocidade para compensar a perda da energia de recuo tanto na emissão quanto na absorção foi  $8 \times 10^{\circ}$  cm/seg , que é próximo ao máximo obtido com uma ultra centrífuga.

3) Um outro método tem sido usado para compensar a perda do recuo, fazendo uso do movimento térmico dos átomos num gás. Este método envolve a variação na temperatura do emissor e do absorvedor para produzir um alargamento Doppler,  $E_{\rm D}=2(E_{\rm r}kT)^{1/2}$ , no espectro do raio gama. Um intervalo de temperatura comparável à energia de recuo deve ser usado a fim de obter um recobrimento observável nos espectros de emissão e absorção.

Ilustraremos o que foi dito acima com exemplos:

a) Sistema atômico - Vamos considerar o caso do Hg onde

$$E_0 = 5 \, \text{ev}$$
 ,  $M = 200 \, \text{u.m.a.}$  ,  $\tau = 10^{-6} \, \text{seg}$    
  $\Gamma \cdot \tau = \hbar$  (Princípio de Incerteza)

$$E_0^2/M c^2 = 2E_r$$
 (Dobro da energia de recuo)

ou

b) Sistema nuclear - Consideremos um caso típico, onde

$$E_0 = 100 \text{ keV}$$
 ,  $M = 100 \text{ u.m.a.}$  ,  $\tau = 10^{-10} \text{ seg}$ 

assim

$$2E_{\Gamma} = 10^{-2}$$
 ev e  $\Gamma = 10^{-5}$  ev

ou

Para tornar possível a ressonância devemos utilizar o método de compensar as energias de recuo 2E<sub>r</sub> fazendo uso dos itens 2 ou 3 acima.

## IV. O Efeito Mossbauer

Mossbauer não compensou a energia de recuo mas eliminou-a. Rudolf Hössbauer trabalhando (1957) em Heidelberg demonstrou a possibilidade de observação de ressonância nuclear de raios gama quando o emissor e o absorvedor estão presos nas redes de cristais. Ele estudou o espalhamento ressonante nuclear de raios gama do núcleo de  $1r^{1.91}$  (com uma energia  $E_0=129$  kev e vida média  $\tau=1,4\times10^{-10}$  seg) através de um cristal natural de irídio (38,5%  $1r^{1.91}$ ).

O resultado supreendente foi que, apesar de que a largura de linha calculada,  $\Gamma = 7 \times 10^{-6}$  ev, era multo menor que a energia de recuo do núcleo do  $1r^{13}$  ,  $E_r = 0.05$  ev, Mossbauer teve uma significativa quantidade de absorção ressonante sem compensar a energia de recuo. O alargamento Doppler é 0,1 ev (para a temperatura ambiente) tendo um recobrimento de linhas de emissão e absorção sem compensação do recuo e ele notou que o efeito de absorção ressonante aumentou com o decréscimo da temperatura do emissor e absorvedor, ao contrário do que era esperado.

Para entender a nova idéia de análise que Mössbauer fez da enissão e absorção de raios gama pelos átomos presos em cristais, ter<u>e</u> mos que distinguir três casos diferentes:

1) Se a energia de recuo do átomo livre é grande comparada à energia de ligação do átomo no cristal, o átomo se deslocará de sua posição. A energia mínima necessária para deslocar um átomo é conhecida de experiências de irradiação e, geralmente, é de 15 a 30 ev. Sob estas circunstâncias, a análise do átomo livre dada acima é aplicável.

- 2) Se a energia de recuo do átomo livre é maior que a energia de vibração da rede do cristal em que está preso o átomo, porém, menor que a energia de deslocamento, o átomo ficará no seu lugar e dissipará a energia na forma de calor.
- 3) Se a energia de recuo é menor que a energia de vibração da rede, um novo efeito aparecerá porque a rede não vibra com energia ar bitrária, mas somente com energias bem definidas e de maneira que as energias dos níveis de vibração são múltiplas umas das outras (chamamos a este fenômeno de quantização da energia). Em baixas temperaturas a rede cristalina pode ser considerada um conjunto de osciladores. Se a energia de recuo dos átomos não é suficiente para elevar um oscilador do estado vibracional fundamental para o primeiro estado vibracional excitado, então nenhuma energia pode ser transferida aos graus de liberdade internos da rede e sim para a rede como um todo, e falamos de emissão sem recuo. Esse efeito é responsável pelo aumento não esperado no espalhamento de raios gama a baixa temperatura, tendo sido primeiramente observado por Mössbauer.

O momento que é transferido à rede como um todo, pode ser calculado, mas a massa que recebe este momento (a massa do cristal) é, para fins práticos, infinita e, portanto, praticamente, nenhuma energia é entregue à rede.

Para que haja emissão sem recuo, precisa ser válida a expressão:

$$E_{v} \gg E_{r}$$
 (8)

onde  $E_{_{V}}$  é uma energia vibracional característica da rede. Nos cristais a energia de vibração é da ordem de  $10^{-2}$  ev .

Vejamos com um exemplo quando acontece o efeito Mossbauer: um bom exemplo é o núcleo de  $Fe^{57}$  preso num cristal de ferro de massa H=1 g. O estado excitado do  $Fe^{57}$  emite raios gama de energia  $E_0=14,4$  keV e vida média  $\tau=1,4\times10^{-7}$  seg.

Dados M=1 g ,  $\tau=1.4\times10^{-7}$  seg ,  $E_0=14.4$  keV e  $E_{\gamma}=10^{-2}$  eV terenos, então

 $E_r = 2.0 \times 10^{-2.5} \text{eV}$  (veja que a energia de recuo é desprezível)  $2E_r << \Gamma$  (ressonância possível)

E<sub>v</sub> >> E<sub>r</sub> (emissão e absorção sem recuo)

Por outro lado, a precisão da sintonização na ressonância é dada pelo

fator de Qualidade, Q , ou seja

$$Q = E_{\gamma}/\Gamma = 14,4 \times 10^{3}/4,6 \times 10^{-9} \times 10^{13}$$

isto é equivalente a afirmar que a energia do raio gama , no efeito Mössbauer, é definida em uma parte em 10<sup>13</sup> , o que resulta mais preciso que a radiação produzida por um laser, correspondendo, também, a um detetor altamente seletivo de raios monocromáticos.

## V. Observação e Técnica

Quando a fonte e o absorvedor têm ambientes quimicamente idên ticos, a energia de transição Mössbauer é exatamente igual à energia necessária para levar o absorvedor do estado fundamental para o estado excitado e assim ocorrerá a absorção ressonante. Felizmente este caso é raro de acontecer. Temos, então, que modificar a energia de transição da fonte para obtermos a ressonância. Assim em um experimento do efeito Mössbauer uma velocidade v é introduzida entre a fon te e o absorvedor para modificar as energias dos raios gama através do deslocamento Doppler de primeira ordem; este é dado por

$$\Delta E = \pm (v/c) E_{\gamma}$$
 (9)

É importante notar que a velocidade da fonte relativa ao absorvedor é usada para varrer sobre a ressonância e não com algum propósito como a compensação da energia de recuo. Um esquema básico para um experimento Hössbauer e um resultado típico são esquematizados na fig. 6.

A absorção ressonante ocorrerá quando a energia do raio gama, emitido pela fonte, coincidir com um nível excitado do absorvedor. As sim, um nível de energia ou grupo de níveis excitados num absorvedor podem ser construidos medindo-se a absorção ressonante em função da velocidade. Um gráfico da intensidade do raio gama transmitido, ι (ν), em função da velocidade relativa, ν , recebe o nome de espectro de Mossbauer. A velocidade Doppler (velocidade relativa) necessária depende da largura de linha natural, da energia do raio gama e da energia dos níveis de excitação (para o Fe<sup>57</sup> temos velocidade de fração de milímetro a aproximadamente l cm/seg , esta última dá uma modificação na energia ΔΕ = 4,8 × 10<sup>-7</sup> ev). Assim uma maneira muito precisa de medir uma pequena diferença de energia é obtida; essa precisão é tomada no sentido relativo e não de medidas absolutas da energia.

Aplitação de Efett Mössbauer e Desenvolvimento dessa Espectrosopia no Brasil

Uma das grandes atrações do efeito Hössbauer é sua aplicabil: dade a uma grande escala de problemas de interações hiperfinas (das pe quenas diferenças de energia que o efeito Mössbauer permite medir) U ma análise das interações hiperfinas está fora do escopo deste artigo. Existem, atualmente, cerca de 43 núcleos de Mössbauer que estão sendo estudados por químicos (para informações em analítica, estruturas, ligações, etc.), físicos (em magnetismo e estado sólido), biólogos (no estudo de análise e identificação de estruturas), geólogos (em análise de minérios, informações de estruturas, etc.) e pelos metalur gistas (para informações de composição, na análise e transformação de fase, etc.). Além disso, o efeito Mössbauer foi aplicado com sucesso no estudo de obras de arte, cerâmicas, etc.. Na indústria o efeito Mossbauer não foi, ainda, amplamente utilizado. Em quase toda litera tura verificamos, entretanto, esforços de pesquisadores em direção de problemas ligados com controle de qualidade, teste de materiais e aná lise de superfície. Recentemente, alguns pesquisadores estão aplican do o efeito Hossbauer em problemas de fontes de energia, por exemplo, caracterização de carvão, sistemas avançados de baterias e células s<u>o</u> lares.

Existem, no momento, oito grupos de pesquisas em efeito Mossbauer no Brasil que estão relacionados abaixo, em ordem alfabética:

- 1. Belo Horizonte Universidade Federal de Minas Gerais;
- 2. Brasília Universidade de Brasília;
- 3. Fortaleza Universidade Federal do Cearã;
- 4. Porto Alegre Universidade Federal do Rio Grande do Sul;
- 5. Rio de Janeiro Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas;
- 6. Rio de Janeiro Universidade Federal do Rio de Janeiro;
- 7. São Paulo Universidade de São Paulo
- 8. Vitória Universidade Federal do Espírito Santo.

Estão em fase inicial de análise todos os trabalhos de pesquisas (teses, publicações, etc.) desses grupos e em futuro próximo será apresentado um trabalho sobre "Os vinte anos do efeito Mössbauer no Brasil".

#### Agradecimentos

VKG agradece ao CNPq, pela concessão dos auxílios de pesquisa.

## BIBLIOGRAFIA

- 1. W.E. Burcham, Sci. Progr. (London) 48, 630 (1960).
- 2. G.K. Wertheim, Nucleonics 19, 52 (1961); Science 144, 253 (1964)
- 3. H. Lustig, Am. J. Phys. 29, 1 (1961).
- 4. R.L. Hössbauer, Science 137, 731 (1962).
- Hössbauer Effect Principles and Applications G.K. Wertheim, Academic Press, New York, U.S.A. (1964).
- The Mössbauer Effect H. Frauenfelder, W.A. Benjamim, New York, U.S.A. (1962).

FIGURAS

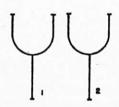
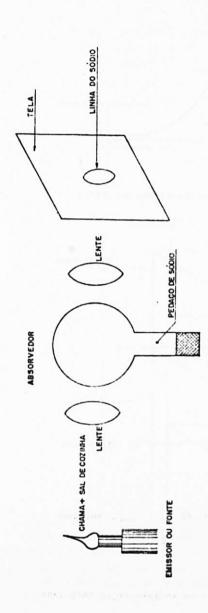
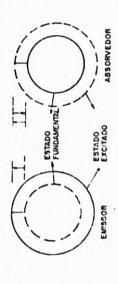


Fig.1 - Diapasões com mesmas frequências.





Flg.2 - Representação esquemática da excitação dos átomos de sódlo através de absorção ressonante.

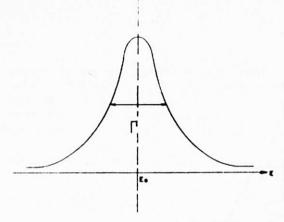


Fig.3 - Distribuição de energia do estado excitado.

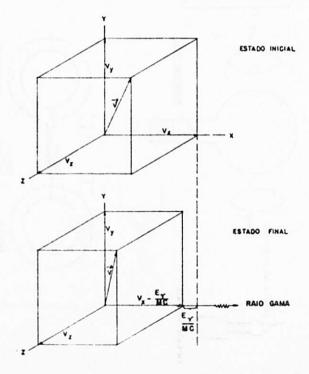


Fig.4 - Conservação do momento na emissão de um raio gama.

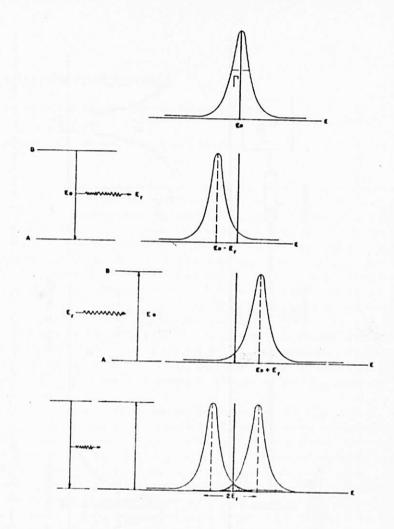


Fig.5 - Distribuições de energias envolvidas na emissão e absorção ressonante.

(a) Distribuição de energia do estado excitado B. (b) Distribuição de energia de raios gama emitidos na transição de B para A. (c) Espectro de energia necessão ria para levar o absorvedor ao estado excitado e fornecer energia de recuo E.

(d) Recobrimento das curvas de emissão e absorção quando o emissor e o absorvedor recebem energias de recuo E.

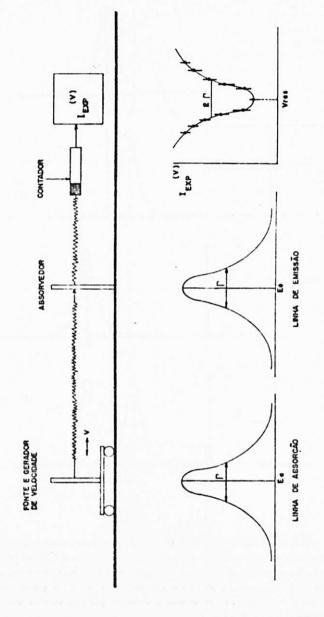


Fig.6 - Esquema básico do efeito Mössbauer, linhas de emissão e absorção, espectro de velocidade em um experimento de transmissão.