

EXEMPLAR Nº 1000
22 04 74

**DETERMINAÇÃO MEDIANTE RADIOTRAÇADORES, DO PESO DE
MERCÚRIO IMOBILIZADO EM CÉLULAS ELETROLÍTICAS**

*CLAUDIO SZULAK, MOHSEN SAID, TAIZIRO OHARA, ANTONIO
CASTAGNET e WLADIMYR SANCHEZ*

PUBLICAÇÃO IEA N.º 304

Agosto — 1973

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
Caixa Postal 11049 (Pinheiros)
CIDADE UNIVERSITÁRIA "ARMANDO DE SALLES OLIVEIRA"
SAO PAULO — BRASIL

**DETERMINAÇÃO MEDIANTE RADIOTRAÇADORES, DO PESO DE
MERCÚRIO IMOBILIZADO EM CÉLULAS ELETROLÍTICAS**

**Claudio Szulak, Mohsen Said, Taiziro Ohara
Antonio Castagnet e Wladimyr Sanchez**

**Coordenadoria de Aplicação de Radioisótopos na Engenharia e na Indústria
Instituto de Energia Atômica
São Paulo - Brasil**

**Publicação IEA Nº 304
Agosto - 1973**

Instituto de Energia Atômica

Conselho Superior

Eng.º Roberto N. Jafet – Presidente
Prof.Dr.Emilio Mattar – Vice-Presidente
Prof.Dr.José Augusto Martins
Dr.Affonso Celso Pastore
Prof.Dr.Milton Campos
Eng.º Helcio Modesto da Costa

Superintendente

Rômulo Ribeiro Pieroni

ÍNDICE

SECÇÃO	PÁGINA
RESUMO	1
1.0.0 INTRODUÇÃO E OBJETIVOS	1
2.0.0 TEORIA DO MÉTODO DE DILUIÇÃO	2
2.1.0 FUNDAMENTOS	2
2.2.0 ERROS E CORREÇÕES	3
2.2.1 Erros estatísticos	4
2.2.2 Erros sistemáticos	5
3.0.0 INSTRUMENTAL E TÉCNICAS UTILIZADAS	8
3.1.0 OPERAÇÕES E CÁLCULOS PRELIMINARES	8
3.1.1 Preparação da solução primária e dos padrões	8
3.2.0 DILUIÇÃO DO MERCÚRIO MARCADO	10
3.2.1 Fracionamento do traçador	10
3.2.2 Injeção do traçador	13
3.3.0 CONTAGEM DE AMOSTRAS E PADRÕES	13
3.3.1 Extração e processamento das amostras	13
3.3.2 Instalação de contagem	13
3.3.3 Metodologia de contagem	17
4.0.0 RESULTADOS	22
4.1.0 DADOS EXPERIMENTAIS	22
4.2.0 ANÁLISES DE DADOS	22
4.3.0 INTERPRETAÇÃO DE RESULTADOS	30
5.0.0 CONCLUSÕES E COMENTÁRIOS	35
6.0.0 APÊNDICE: "DETERMINAÇÃO DE MERCÚRIO IMOBILIZADO NAS CÉLULAS ELETROLÍTICAS S50, HVB E LH15"	39
6.1.0 PREPARAÇÃO DAS SOLUÇÕES	39
6.1.1 Solução Primária	39
6.1.2 Solução Secundária	39

6.2.0	PREPARAÇÃO DOS PADRÕES	40
6.3.0	FRACIONAMENTO DA SOLUÇÃO SECUNDÁRIA E INJEÇÃO NAS CÉLULAS	40
6.4.0	CONTAGEM DE AMOSTRAS	40
6.5.0	FÓRMULAS UTILIZADAS NOS CÁLCULOS	45
6.5.1	Peso de Hg nas Células	45
6.5.2	Erro no Valor do Peso Q Calculado	46
6.6.0	PESO DE Hg NAS CÉLULAS	47
	AGRADECIMENTOS	48
	BIBLIOGRAFIA	48

DETERMINAÇÃO MEDIANTE RADIOTRAÇADORES, DO PESO DE MERCÚRIO IMOBILIZADO EM CÉLULAS ELETROLÍTICAS

Claudio Szulak, Mohsen Said, Taiziro Ohara
Antonio Castagnet e Wladimir Sanchez

RESUMO

O conteúdo de mercúrio imobilizado nas células eletrolíticas de uma fábrica de soda "Solvay", foi medido por meio da técnica de diluição radioisotópica, empregando-se ^{203}Hg como traçador (período de semidesintegração de 46,6 dias; energia de 81,5% dos raios gama: 279 keV).

Este estudo foi realizado pela Divisão de Aplicação de Radioisótopos na Engenharia e na Indústria (DAREI) do Instituto de Energia Atômica de São Paulo (IEA), com a cooperação efetiva do Laboratório Central da Eletro Cloro S.A. (Rio Grande da Serra, S.P., Brasil).

O trabalho foi executado em duas etapas:

- 1) um estudo preliminar restrito a duas células;
- 2) a medição simultânea das 72 células da Eletro Cloro S.A.

O primeiro ensaio teve por objetivo:

- a) investigar os possíveis efeitos de uma lenta difusão do traçador nas camadas de mercúrio amalgamadas nas paredes e fundo das células;
- b) determinar a exatidão e precisão do sistema utilizado, em função da atividade do traçador e do tempo de medida;
- c) avaliar os requerimentos para a medição simultânea das 72 células.

Para esclarecer o ponto a), realizaram-se medições durante 48 dias. Neste período não se acrescentou nem se retirou mercúrio das células, para evitar perturbações no processo de difusão e erros nos cálculos subsequentes.

O erro normal para uma determinação isolada do peso de mercúrio resultou de $\pm 1,6\%$, sendo que, a maior contribuição a este erro, foi devida às flutuações estatísticas do processo de decaimento radioativo.

Dentro dessa tolerância, e decorridas 24 horas desde a injeção do mercúrio radioativo nas células, nenhum efeito da difusão lenta do ^{203}Hg foi notado.

Com base neste estudo preliminar, planejou-se e executou-se a segunda etapa, consistente na medição simultânea do mercúrio imobilizado em cada uma das células eletrolíticas em operação.

Neste caso, o peso de mercúrio em cada célula determinou-se com um erro menor que 0,5% para uma confiança de 95,5% (erro 2 σ). A segunda parte dos trabalhos se descreve no Apêndice do presente relatório.

1.0.0 INTRODUÇÃO E OBJETIVOS

O método de diluição isotópica é utilizado extensivamente para determinar pesos e volumes de líquidos, particularmente em casos onde é impraticável ou inconveniente medições gravimétricas ou volumétricas de soluções armazenadas em recipientes ou que recirculem em um processo industrial qualquer. Tal fato ocorre com o mercúrio utilizado como cátodo nas células eletrolíticas destinadas à fabricação de hidróxido de sódio e cloro pelo processo "Solvay". O

controle deste processo exige o conhecimento periódico da massa de mercúrio que está sendo recirculado em cada célula.

Os métodos gravimétricos são desvantajosos porque exigem a paralização das células durante o período de pesagem, além de provocar um erro intrínseco representado pela presença de amálgamas e impurezas na fase líquida do mercúrio e pelo amálgama retido nas paredes e fundo de ferro que constituem os recipientes das células eletrolíticas.

A técnica de diluição isotópica baseia-se na medida da radioatividade de amostras de mercúrio retiradas da célula eletrolítica, desde que uma quantidade conhecida de mercúrio radioativo, de determinada atividade específica, foi incorporado e homogeneamente dissolvido em toda massa de mercúrio estável existente na célula.

Mediante uma simples fórmula matemática pode-se calcular de forma precisa e segura a quantidade de mercúrio imobilizado em cada célula eletrolítica sem que os inconvenientes citados anteriormente intervenham no processo.

Os objetivos fundamentais deste trabalho foram:

- a) aprimorar a técnica utilizada para uma eventual aplicação em grande número de células (72);
- b) estudar o efeito do amálgama na fase sólida levando em conta a velocidade de diluição do mercúrio marcado;
- c) preparar o pessoal para o trabalho a ser realizado nas 72 células;
- d) avaliar a precisão das medições e os aspectos econômicos envolvidos.

2.0.0 TEORIA DO MÉTODO DE DILUIÇÃO

2.1.0 FUNDAMENTOS

Sejam P kg de mercúrio marcado obtidos a partir de uma solução primária cuja atividade específica é a_0 $\mu\text{Ci}/\text{kg}$. Incorporando-se o mercúrio marcado em massa desconhecida, de Q kg de mercúrio estável e admitindo-se que haja uma mistura homogênea, a atividade específica final da solução será representada pela equação:

$$a = \frac{P a_0}{P + Q} \quad \mu\text{Ci}/\text{kg} \quad (1)$$

A massa desconhecida de Q kg de mercúrio estável pode ser calculada desde que se conheça com precisão os valores de a_0 , a e P.

$$Q = P \left(\frac{a_0}{a} - 1 \right) \text{ kg} \quad (2)$$

Para condições idênticas de medição, as atividades específicas a e a_0 serão proporcionais às respectivas taxas de contagem n e n_0 expressas em contagens por minuto (cpm):

$$n_0 = K a_0 \text{ cpm} \quad (3)$$

$$n = K a \text{ cpm} \quad (4)$$

e a equação (2) passa a ter a forma:

$$Q = P \left(\frac{n_0}{n} - 1 \right) \text{ kg} \quad (5)$$

Na prática, dependendo da relação de diluição, pode resultar que n_0 seja muito superior a n . Por limitações inerentes ao sistema detetor, a validade da proporcionalidade admitida nas equações 3 e 4 pode ser afetada. Para evitar este problema, ao invés de se medir a atividade a_0 da solução primária mede-se a atividade de a_p de um padrão preparado a partir da diluição de p gramas de mercúrio radioativo em q gramas de mercúrio estável, escolhidas de tal modo que a relação $\frac{p}{p+q}$ seja aproximadamente igual à relação $\frac{P}{P+Q}$. Esta relação pode ser determinada estimando-se aproximadamente o valor da quantidade Q . Nestas condições tem-se:

$$n_p = K a_p = K \frac{p}{p+q} a_0 \text{ cpm} \quad (6)$$

Chamando $r = \frac{p}{p+q}$ e de acordo com a equação (3) resulta:

$$n_p = r n_0 \text{ cpm} \quad (7)$$

$$n_0 = \frac{n_p}{r} \text{ cpm}$$

Substituindo a equação (7) na equação (5) obtém-se a fórmula que é utilizada na prática:

$$Q = P \left(\frac{n_p}{rn} - 1 \right) \text{ kg} \quad (8)$$

A utilização da equação (8) é vantajosa porque n_p e n são de mesma ordem de grandeza, além do que a relação n_p/n elimina automaticamente as correções devidas ao decaimento da atividade desde o momento da injeção até o instante de tomada das medidas, já que a medição do padrão e das amostras é efetuada uma em seguida a outra.

Todos os parâmetros que intervêm na equação (8) devem ser medidos com precisão para garantir um erro mínimo da determinação da massa Q de mercúrio contido na célula.

Os valores n_p e r representam as contagens líquidas em contagens por minuto do padrão e da amostra, obtidos subtraindo-se a leitura de fundo ou "background" n_f (cpm) devida à radioatividade natural das contagens brutas n'_p e n' (cpm).

2.2.0 ERROS E CORREÇÕES

Uma determinação isolada da massa de mercúrio pelo método de diluição isotópica, está

sujeita, como qualquer outro método de medida, a dois tipos de erros:

- 1 - erros estatísticos devidos a variações aleatórias na determinação experimental dos parâmetros que intervêm na fórmula de cálculo e
- 2 - erros sistemáticos por aplicação de uma fórmula que não representa exatamente a "função de transferência" ou relação entre os parâmetros medidos e o resultado que se quer obter, ou seja, a massa de mercúrio.

A primeira categoria de erro afeta a precisão do método e a segunda sua exatidão.

2.2.1 ERROS ESTATÍSTICOS

Estes erros provêm de duas fontes:

- a) flutuações estatísticas inerentes a toda medida de radioatividade;
- b) erros experimentais próprios dos equipamentos e da técnica de contagem utilizada.

Na equação (8) intervêm a relação n_p/n de dois valores afetados de desvios normais $\sigma(n_p)$ e $\sigma(n)$ respectivamente. O erro relativo normal do quociente será:

$$\epsilon = \sqrt{\left[\frac{\sigma(n_p)}{n_p}\right]^2 + \left[\frac{\sigma(n)}{n}\right]^2} \quad (9)$$

onde: $\sigma(n_p) = \sqrt{\frac{n_p}{T_p}} \text{ cpm}$

$$\sigma(n) = \sqrt{\frac{n}{T}} \text{ cpm}$$

T e T_p os tempos de contagem em minutos da amostra e do padrão respectivamente.

Substituindo-se na equação (9) se obtém:

$$\epsilon = \sqrt{\frac{1}{n_p \cdot T_p} + \frac{1}{nT}} \quad (10)$$

Como neste caso $n_p \cong n$ e $T_p \cong T$, tem-se:

$$\epsilon = \sqrt{\frac{2}{nT}}$$

$$\epsilon \% = 100 \sqrt{\frac{2}{nT}} \quad (11)$$

A equação (11) representa o erro porcentual de Q devido às flutuações estatísticas das medidas de radioatividade, diminuindo para valores crescentes de n e T.

Conhecido n (cpm), pode-se calcular T (min), para que o erro relativo não supere um determinado limite.

Os erros experimentais devem-se às imprecisões próprias dos equipamentos de medida, tanto os eletrônicos de contagem como os de medida de massa, além das deficiências da técnica operatória utilizada para executar as medições. Em geral operando-se cuidadosamente com contadores e balanças de precisão o erro experimental pode ser desprezado face aos erros estatísticos nas medidas de radioatividade.

2.2.2 ERROS SISTEMÁTICOS

A equação (8) representa a função de transferência que relaciona os parâmetros obtidos experimentalmente (n, n_p , r e P) com a massa Q dada em kg, somente quando são satisfeitas as seguintes condições:

- 1 - que no momento de tomada das amostras, o mercúrio marcado esteja homogeneamente diluído em toda a massa de mercúrio presente na célula, inclusive o amálgama em fase sólida do fundo e das paredes de ferro;
- 2 - que no lapso de tempo compreendido entre a injeção do traçador e a tomada da amostra não tenha sido agregado mercúrio fresco à célula em estudo;
- 3 - que não exista radioatividade residual no mercúrio da célula, proveniente de ensaios anteriores.

Cada um destes fatores acarretaria, pela simples aplicação da equação (8) a introdução de erros sistemáticos no cálculo de Q, afetando assim a exatidão do método.

A primeira fonte de erros se elimina quando a medida da atividade das amostras é efetuada após decorrido um intervalo de tempo suficiente para a completa homogeneização e diluição do traçador. A completa homogeneização do mercúrio é alcançada poucas horas após a injeção devido ao processo de recirculação do mercúrio nas células.

O tempo de diluição, por sua vez, pode ser muito maior devido à presença do amálgama em fase sólida e um dos objetivos deste trabalho mencionado de início foi precisamente determinar a influência deste amálgama na velocidade de diluição. A não consideração de uma diluição mais lenta que é suposta, a aplicação da equação (8) daria um erro por falta, no cálculo de Q, cuja magnitude dependeria da quantidade de amálgama em fase sólida.

Introduzindo-se correções adequadas na equação (8) pode-se evitar, na maioria das vezes,

as outras duas fontes de erros.

Chamando M kg a quantidade de mercúrio que eventualmente se adiciona à célula, depois da marcação, a nova função de transferência que indica o valor Q kg, inicialmente presente na célula é:

$$Q = \frac{n_p}{n} \frac{P}{r} - (P + M) \text{ kg} \quad (12)$$

No caso de se retirar uma massa G kg de mercúrio já marcado, antes de se introduzir a quantidade M kg, pode-se demonstrar que o valor de Q será calculado pela equação:

$$Q = \frac{(G - M + A) + \sqrt{(G - M + A)^2 - 4 AG}}{2} - P \text{ kg} \quad (13)$$

onde $A = \frac{P}{r} - \frac{n_p}{n}$

Nos casos em que se adiciona mercúrio na célula, depois de retirado uma quantidade não desprezível de mercúrio marcado, a utilização da equação (12) provoca um erro sistemático por excesso, no cálculo de Q . Chamando Q' ao valor obtido a partir da equação (12), demonstra-se que o erro $\Delta = Q - Q'$ será:

$$\Delta = \frac{G M}{P + Q - G} \text{ kg} \quad (14)$$

Como $(P + Q) > G$, teremos sempre $\Delta > 0$.

Expressando G e M como frações g e m de Q , obtém-se:

$$G = g Q \text{ kg}$$

$$M = m Q \text{ kg}$$

$$\Delta = \frac{g.M.Q^2}{P + Q - g Q} \text{ kg} \quad (15)$$

$$\frac{\Delta}{Q} = \frac{g.m.Q}{P + Q - g Q} \cong \frac{g.m}{1 - g}$$

pois $\frac{P}{Q} \ll 1$

Supondo que $g = m = 0,1$, tem-se:

$$\frac{\Delta}{Q} = \frac{10^{-2}}{0,9} = 1,1\%$$

Isto significa que nos casos em que a quantidade de mercúrio retirada e adicionada depois da marcação seja da ordem de 10% da massa inicial de mercúrio contida na célula, o erro cometido ao se desprezar o valor G é apenas da ordem de 1% de Q. Na prática, durante o período necessário a realização do ensaio G e M são bastante inferiores a 10% de Q, de modo que o erro cometido ao se aplicar a equação (12), desprezando o valor de G, é insignificante.

Demonstra-se que as equações (14) e (15) representam o limite superior do erro cometido ao se desprezar a influência de G nos casos em que a entrada e saída de mercúrio das células ocorre intermitentemente e desde que G representa a quantidade total de mercúrio retirado, antes da última adição que precedeu a retirada de amostras para a contagem da radiação.

Nos casos em que o mercúrio das células ainda tenha radioatividade remanescente proveniente de ensaios anteriores, novas correções deverão ser processadas nas equações anteriores.

Se antes da injeção do traçador uma amostra retirada da célula acusar uma taxa de contagem n_i cpm, significa que a massa Q de mercúrio contida na célula possui uma atividade inicial A_i μ Ci.

A leitura n_i será proporcional à atividade específica $a_i = \frac{A_i}{Q}$ μ Ci/kg da amostra inicial.

$$n_i = K \frac{A_i}{Q} \text{ cpm} \quad (16)$$

Acrescentando-se P e M, a atividade específica da nova solução será $\frac{a_o P_o + A_i}{Q + P + M}$ μ Ci/kg e uma amostragem realizada nestas condições proporcionará a seguinte taxa de contagem:

$$n = K \frac{a_o P_o + A_i}{Q + P + M} \text{ cpm} \quad (17)$$

Levando em conta as equações (3), (7) e (16) obtém-se:

$$n = \frac{\frac{n_p P}{r} + n_i Q}{Q + P + M} \text{ cpm} \quad (18)$$

O valor de Q pode então ser calculado a partir da seguinte equação:

$$Q = \frac{1}{n - n_i} \times \frac{n_p P}{r} - nP - nM \text{ kg} \quad (19)$$

Uma variante do método de diluição permite que, ao invés de se calcular os pesos individuais Q_i de mercúrio de cada célula de uma instalação calcula-se o peso médio \bar{Q} por célula. Sendo m o número total de células, o valor médio será:

$$\bar{Q} = \frac{1}{m} \sum Q_i \text{ kg} \quad (20)$$

Injetando-se P kg de mercúrio radioativo em cada célula e sendo M kg a quantidade total

de mercúrio fresco adicionado posteriormente às m células, a atividade específica \bar{a} $\mu\text{Ci/kg}$ de uma amostra média será:

$$\bar{a} = \frac{a_0 m P}{mP + m\bar{Q} + M} \quad \mu\text{Ci/kg} \quad (21)$$

A taxa de contagem \bar{n} obtida a partir da amostra média será:

$$\bar{n} = K \bar{a} \quad \text{cpm} \quad (22)$$

$$\bar{n} = \frac{K a_0 m P}{mP + m\bar{Q} + M} \quad \text{cpm}$$

Das equações (3), (7) e (22) obtém-se:

$$\bar{Q} = \frac{P}{r} \frac{n_p}{\bar{n}} - \left(P + \frac{M}{m} \right) \quad \text{kg} \quad (23)$$

O peso total das m células será:

$$Q_T = m \bar{Q} \quad \text{kg.}$$

Quando varia consideravelmente o peso Q_i entre as células, a equação (23) conduz a um erro por falta, em relação ao verdadeiro valor médio obtido pela equação (20).

3.0.0 INSTRUMENTAL E TÉCNICA UTILIZADAS

3.1.0 OPERAÇÕES E CÁLCULOS PRELIMINARES

3.1.1 PREPARAÇÃO DA SOLUÇÃO PRIMÁRIA E DOS PADRÕES

Neste ensaio utilizou-se como traçador radioativo o ^{203}Hg , obtido por radiação de 200 g de mercúrio estável, no reator IEAR-1, durante 7 semanas. A atividade total conseguida foi 700 mCi, visando um eventual ensaio das 72 células simultaneamente. A atividade específica injetada em cada célula foi da ordem de 5 mCi/tonelada.

Por questões de segurança, antes de ser irradiado no reator, o mercúrio foi colocado em uma ampola de quartzo. Após ativação, rompendo-se a ampola com o dispositivo mostrado na figura 1 libertou-se o mercúrio marcado que foi inicialmente diluído em 6 kg de mercúrio estável para facilitar o manuseio da solução radioativa.

Mediante diluições sucessivas e medidas comparativas de atividade preparou-se uma solução primária de 7 kg de mercúrio marcado e atividade específica a_0 calculada de modo que as amostras retiradas das células, logo após a injeção e diluição do ^{203}Hg , acarretassem uma taxa de contagem de 2000 cpm



Figura 1 - Rotura das ampolas de quartzo com mercúrio radioativo.

Dos 7 kg de solução primária separou-se duas partes iguais de P kg cada, para serem injetadas nas células (seção 3.2.0) e se preparam dois padrões com o procedimento descrito em 2.1.0.

Retirou-se p gramas da solução primária que foram diluídas em q gramas de mercúrio estável tal que (p + q) fosse suficiente para preparar dois padrões com atividade específica similar a que se esperava obter com as amostras. Daí resultam as equações já analisadas.

$$\frac{a_0 p}{p + q} = \frac{a_0 P}{Q + P}$$

$$r = \frac{p}{p + q} = \frac{P}{P + Q}$$

Sendo $P \cong 3,4$ kg e estimando-se o valor de Q em 2.000 kg obteve-se:

$$r = \frac{p}{p + q} \cong 1,7 \times 10^{-3} \quad (24)$$

Como o recipiente de contagem da radiação podia conter 3 kg de mercúrio fixou-se este valor para os padrões. Nestas condições, obteve-se:

$$p + q \cong 6 \text{ kg}$$

Substituindo este valor na equação (24) tem-se:

$$p \cong 10 \text{ g}$$

$$q \cong 5.990 \text{ g}$$

Utilizando-se balança de precisão registrou-se os valores:

$$p = 10,2 \text{ g (mercúrio radioativo)}$$

$$q = 5.999,8 \text{ g (mercúrio estável)}$$

Portanto o valor preciso de r utilizado posteriormente nos cálculos resultou:

$$r = 1,7 \times 10^{-3}$$

o peso de cada padrão foi de 3 kg.

3.2.0 DILUIÇÃO DO MERCÚRIO MARCADO

3.2.1 FRACIONAMENTO DO TRAÇADOR

Visando facilitar a preparação das soluções primárias do traçador, no caso em que se estendesse a medição para um grande número de células, construiu-se o recipiente mostrado na figura 2. O referido recipiente forma parte da instalação mostrada na figura 3 e permite a obtenção rápida de um peso constante de mercúrio marcado em cada operação. Para tal

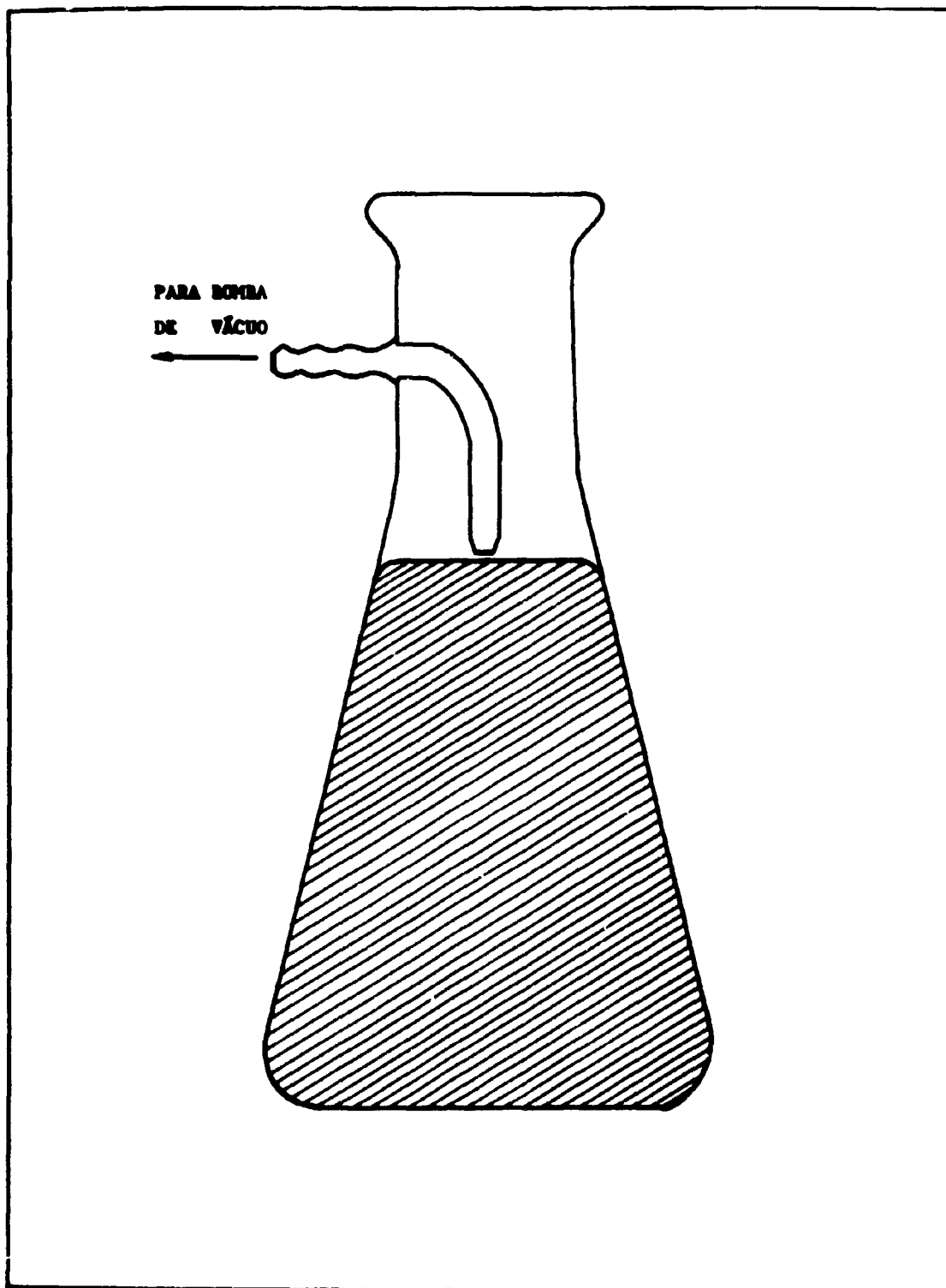


FIGURA 2 - RECIPIENTE PARA OBTEN UN VOLUME CONSTANTE DE MERCÚRIO.

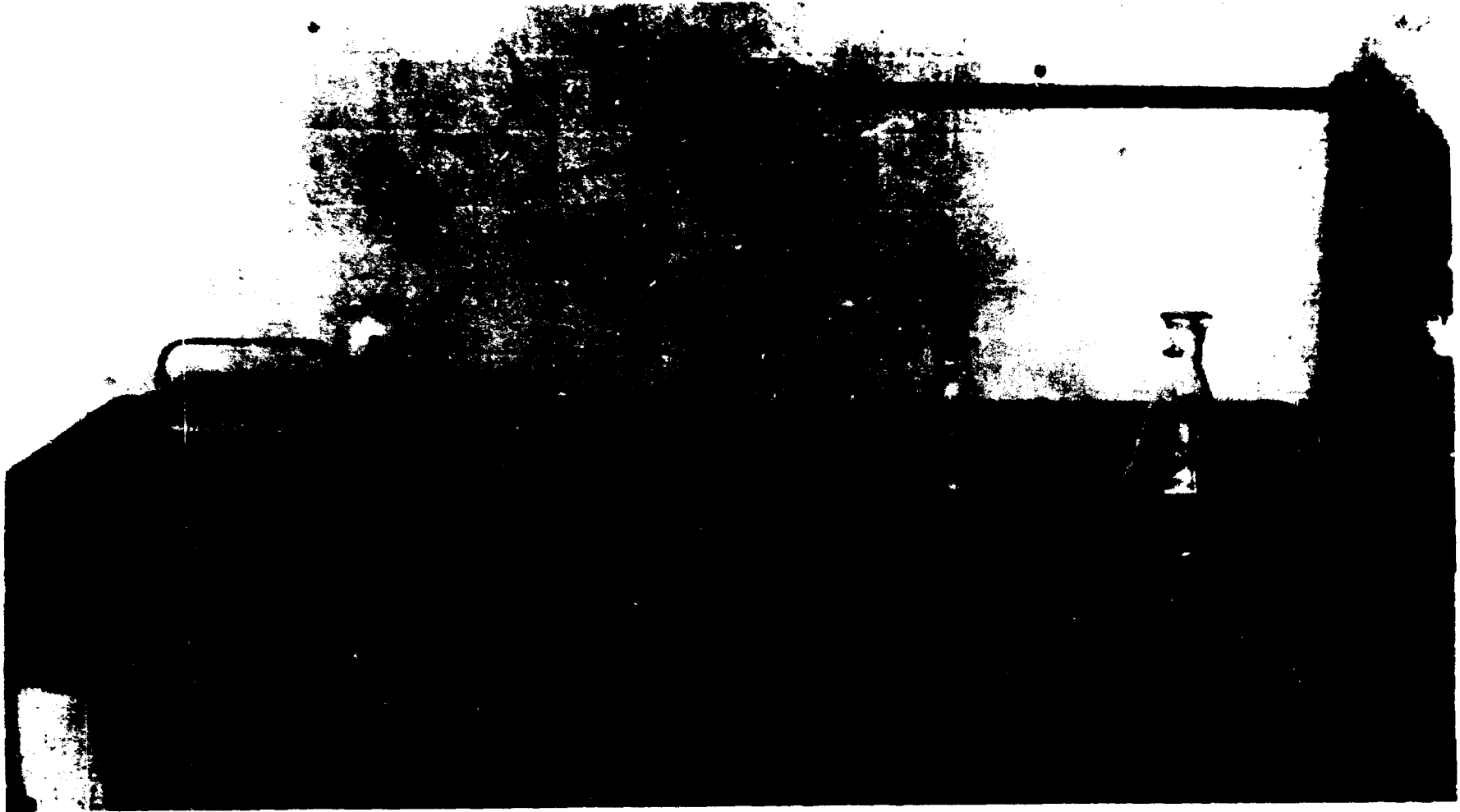


Figura 3 - Sistema para o fracionamento do traçador em porções de igual volume.

enchou-se o recipiente com solução primária até que a mesma ultrapasse o tubo "pescador" ligando-se a uma bomba de vácuo. O excesso de mercúrio fica retido no frasco intermediário de descarga, sendo logo recuperado.

Mediante operações sucessivas e pesando com precisão o mercúrio armazenado em cada vez pelo recipiente, determinou-se que o peso P da solução primária assim preparada era:

$$P = 3.370 \pm 6 \text{ g}$$

3.2.2 INJEÇÃO DO TRAÇADOR

Colocou-se o peso P de mercúrio no dispositivo mostrado na figura 4.

A introdução se efetua na pilha, em um acesso próximo à bomba de recirculação do mercúrio, submergindo o extremo do tubo de descarga um pouco abaixo da superfície do mercúrio. Antes de retirar o dispositivo, lavou-se com mercúrio limpo previamente retirado da célula, para arrastar qualquer atividade residual.

O tempo de injeção abrangeu aproximadamente um período do ciclo de circulação do mercúrio, entre a pilha e a célula propriamente dita. Dessa forma, se obtém uma rápida homogeneização do traçador em toda a massa do mercúrio (secção 4.1.0).

3.3.0 CONTAGEM DE AMOSTRAS E PADRÕES

3.3.1 EXTRAÇÃO E PROCESSAMENTO DAS AMOSTRAS

As amostras foram tomadas na saída da pilha, armazenando-se em frascos de vidro (rotulados para identificação) que permitiam acumular um peso superior aos 2,5 kg requeridos pelo recipiente de contagem. (figura 5)

O mercúrio na saída da pilha, está praticamente livre de impurezas de sódio que poderiam modificar sua densidade, afetando a auto absorção de radiação.

Para as medições de atividade, o mercúrio dos frascos foi colocado em um funil separador, e deste passado com precaução para o recipiente de contagem.

Desta maneira se evita incorporar solução aquosa, óxidos e outras impurezas ao volume destinado à medição de radioatividade.

Medições posteriores comparativas de atividade de uma amostra lavada ou não com HCL em solução 2 N demonstraram que o procedimento anteriormente descrito era suficiente para garantir a precisão e exatidão das contagens. A figura 6 é uma vista parcial do laboratório da Eletro-Cloro, onde se processaram as amostras.

3.3.2 INSTALAÇÃO DE CONTAGEM

Mediram-se as respectivas atividades, em contagem por minuto, de amostras extraídas das células, e dos padrões previamente preparadas, utilizando a instalação ilustrada na fig. 7, que

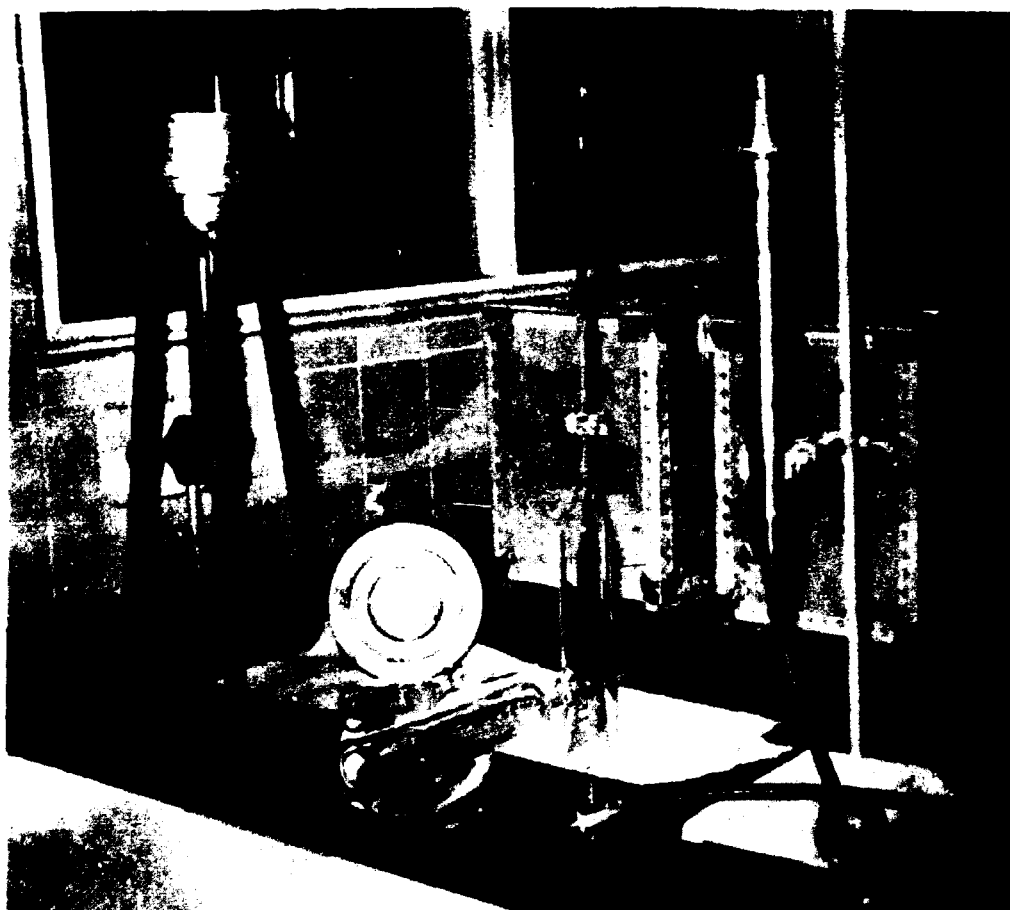


Figura 4 - Dispositivo injetor



Figura 5 - Funis separadores e frascos rotulados para a armazenagem das amostras.

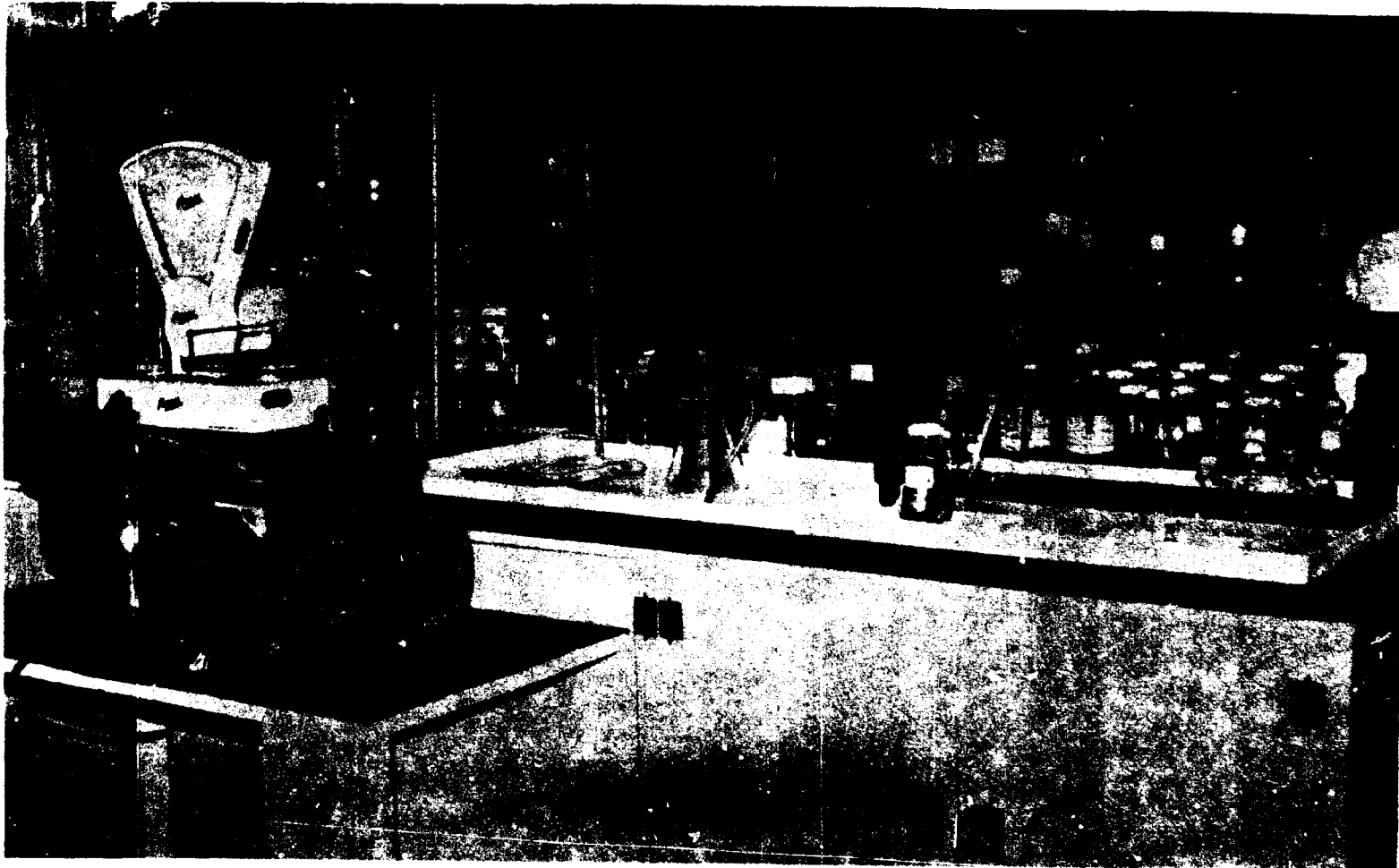


Figura 6 - Vista parcial do Laboratório da Eletro Cloro onde se processaram as amostras

Consta dos seguintes elementos:

3.3.2.1 RECIPIENTE DE CONTAGEM. Foi desenhado e dimensionado de acordo com o detetor disponível, para medir com a máxima eficiência de detecção e precisão geométrica, um volume praticamente "infinito" de ^{203}Hg (figura 8).

Comprovou-se experimentalmente que variações de ± 5 mm de mercúrio com respeito a marca visual do recipiente, não afetavam em absoluto as medições de atividade.

3.3.2.2 SONDA DE MEDIÇÃO E BLINDAGEM. Ambos elementos estão esquematizados na figura 9.

A sonda está composta por um cristal cintilador de NaI(Tl) de 1" x 1" associado a uma fotomultiplicadora. Uma blindagem de chumbo cilíndrica, com tampa de 5 cm de espessura rodeia a parte sensível da sonda servindo para diminuir a influência da radiação de fundo e proteger o operador.

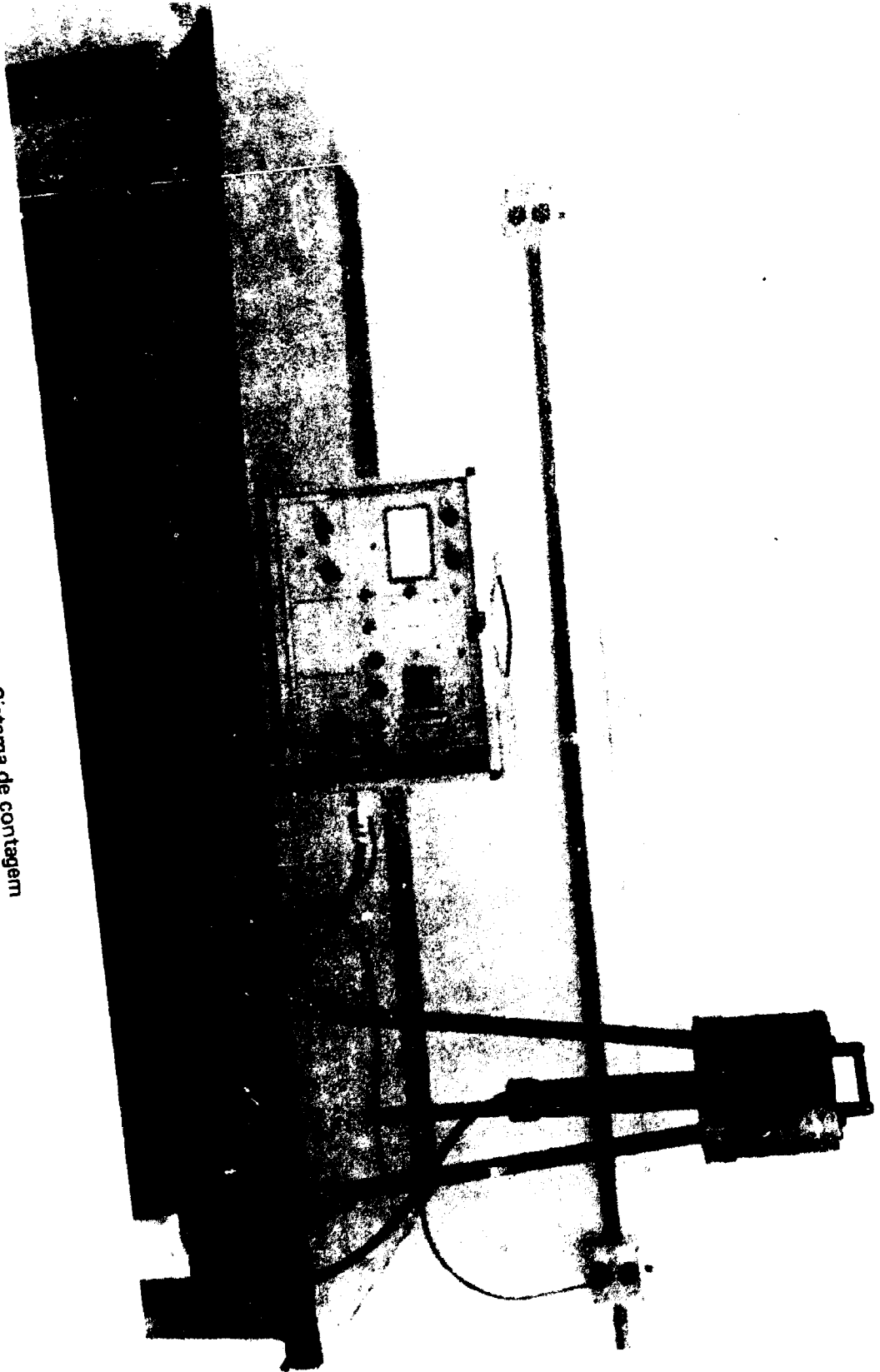
3.3.2.3 ESPECTRÔMETRO GAMA. A sonda foi conectada a um analisador monocanal de raios gama, com indicação analógica e digital de leitura e pré-fixador de tempo de contagem. (figura 10).

3.3.3. METODOLOGIA DE CONTAGEM

Com exceção do primeiro dia de injeção do mercúrio marcado, no qual se realizaram amostras e medições sucessivas a curtos intervalos de tempo em uma das células para estudar o processo de misturação do traçador, a contagem das amostras, padrões e ambiente (background) foi realizada a cada sete dias, de acordo com o seguinte procedimento:

- a) Extraíu-se diariamente uma amostra de aproximadamente 3 kg de cada célula, que foram sendo armazenadas até a data da contagem, de acordo com explicação na secção 3.3.1;
- b) A cada sete dias o pessoal do IEA efetuava as medições, utilizando a instalação descrita na secção 3.3.2;
- c) O discriminador do analisador monocanal foi calibrado e ajustado para eliminar a radiação do ^{197}Hg , que poderia afetar os resultados, particularmente durante os primeiros dias de ensaio;
- d) Em todos os casos, as amostras e padrões foram contados durante um tempo suficiente para totalizar pelo menos 10.000 contagens. Para a contagem das amostras seguiu-se o procedimento descrito na secção 3.3.1;
- e) Para evitar possíveis interferências entre a contagem de uma e outra amostra, foi efetuada uma lavagem do recipiente com uma solução de HNO_3 a 5%, seguida de uma secagem com acetona;
- f) A radiação de fundo foi determinada no começo e no fim da série de medições, nivelando o recipiente de contagem com mercúrio estável.

Figura 7 - Sistema de contagem



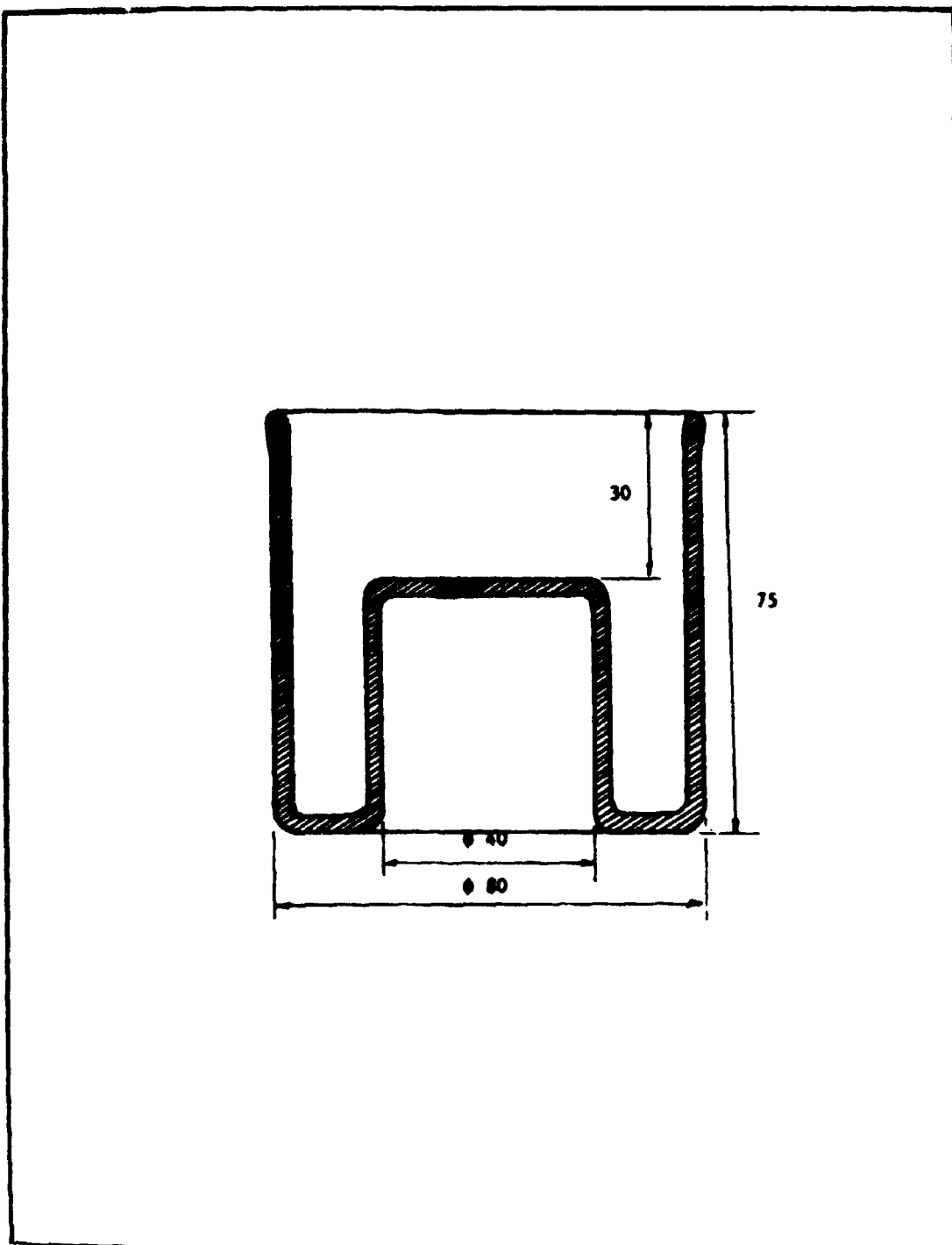


FIGURA 8 - RECIPIENTE DE CONTAGEM.

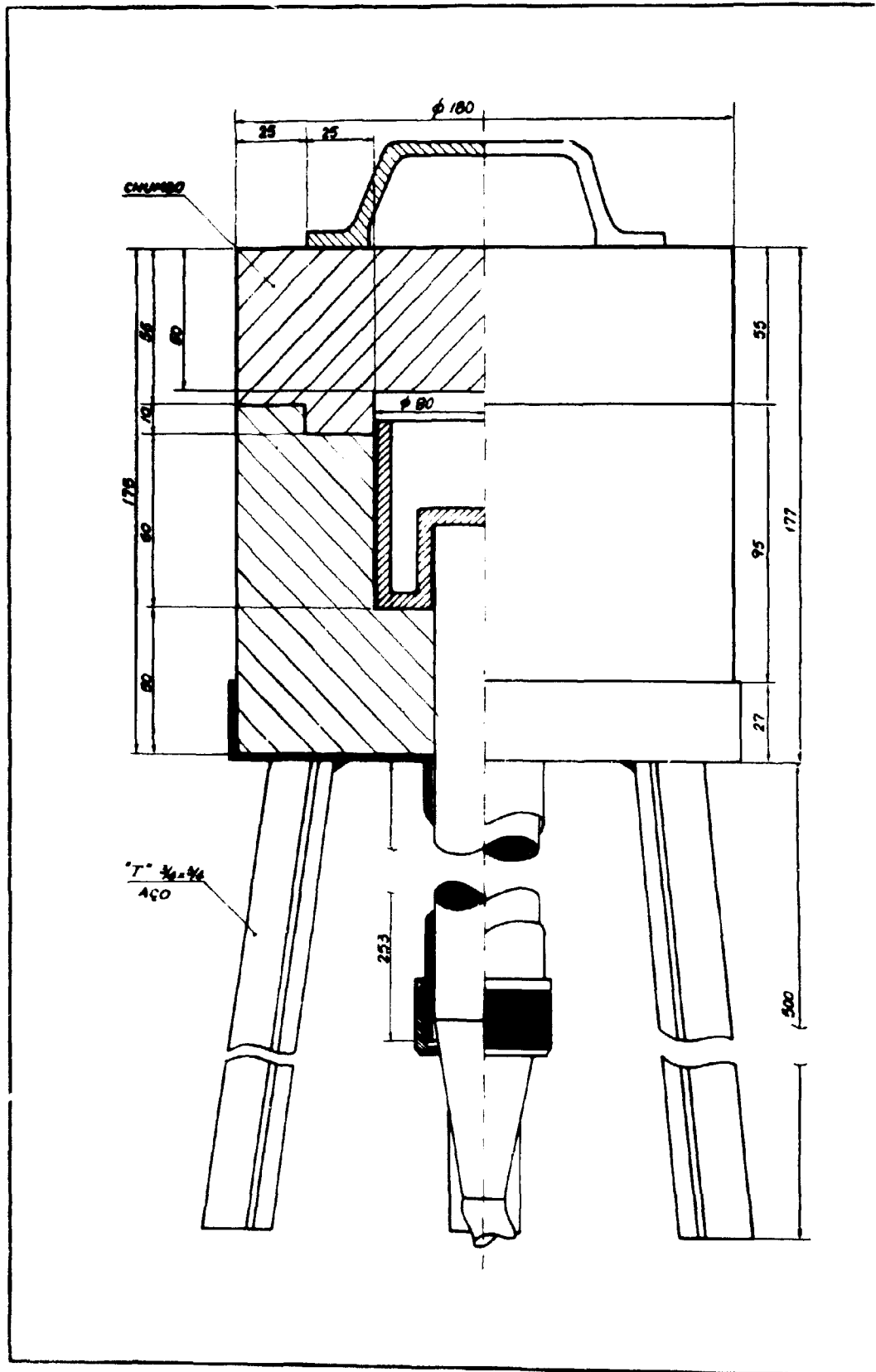


FIG.9. SONDA DETETORA E BLINDAGEM DE CHUMBO

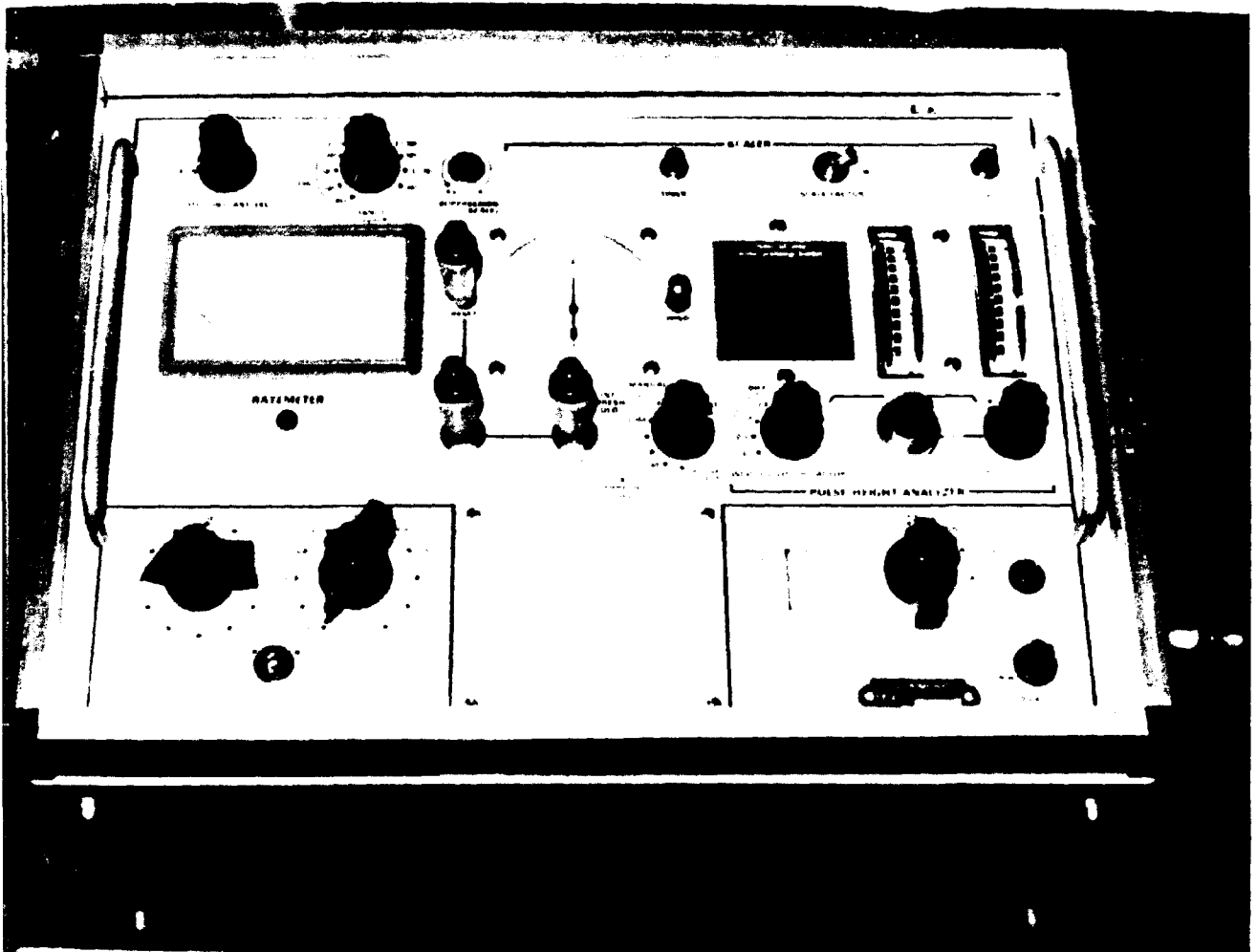


Figura 10 - Espectrômetro BASC SCALER

4.0.0 RESULTADOS

4.1.0 DADOS EXPERIMENTAIS

A tabela 1 e o gráfico da fig. 11 referem-se à amostragem inicial da célula número 3 e referem as variações de atividade específica das amostras, no começo do processo de diluição e homogeneização do traçador.

A tabela 2 resume os resultados de ensaio nas duas células (número 3 e número 4). A primeira coluna indica o dia de amostragem e a segunda a data real em que se realizou a medição. Observou-se que só as amostras dos dias "zero", 6, 13, 20, 27, 34, 41 e 47 foram contadas nesses mesmos dias por corresponder com as datas de medições. As amostras restantes foram extraídas antes das datas de contagem e armazenadas, conforme dito na secção 3.3.3.

A terceira e quarta colunas representam as contagens brutas em contagens por minuto, de ambas células obtidas depois de 10 minutos de medição.

A quinta e sexta colunas indicam as medidas médias da radiação de fundo e dos padrões, respectivamente, sendo que as últimas também se referem a 10 minutos de contagem.

Finalmente a sétima, oitava e nona colunas, mostram as contagens líquidas de ambas as células e do padrão médio, obtidas através das subtrações da radiação de fundo aos valores anteriores.

No gráfico da fig. 12 estão representados estes últimos dados, somente para aqueles dias que concordam com as datas de medições, visando permitir a interpolação gráfica de todos os valores experimentais e extrair posteriores conclusões sobre o processo de diluição. A curva obtida reflete a diminuição da atividade específica das amostras e do padrão médio, em função do tempo.

No caso das amostras, esta diminuição poderia ser atribuída não somente ao decaimento da radioatividade do mercúrio, mas também à diluição lenta do traçador na amálgama de ferro, se este efeito fosse realmente significativo.

4.2.0 ANÁLISE DE DADOS

Na tabela 3, analisa-se a dispersão de valores das relações $(n_p/n_3)_i$ $(n_p/n_4)_i$, em cada medição, com relação aos meios:

$$\left(\frac{\bar{n}_p}{n_3}\right) = \frac{1}{48} \sum_0^{47} (n_p/n_3)_i \quad (24)$$

$$\left(\frac{\bar{n}_p}{n_4}\right) = \frac{1}{48} \sum_0^{47} (n_p/n_4)_i \quad (25)$$

TABELA 1

AMOSTRAGEM INICIAL DA CÉLULA 3⁽¹⁾

HORA	CONTAGEM	TEMPO	RITMO
16 : 15	3588	2	1794 ± 30
16 : 20	1550	2	775 ± 20
16 : 25	2971	2	1485 ± 27
16 : 45	4397	2	2199 ± 33
17 : 15	4405	2	2202 ± 33
17 : 35	3824	2	1912 ± 31
18 : 20	4024	2	2012 ± 32

(1) DATA: 14/10/1971

INÍCIO DA INJEÇÃO : 16 : 02 hs.

FINAL DA INJEÇÃO : 16 : 05 hs.

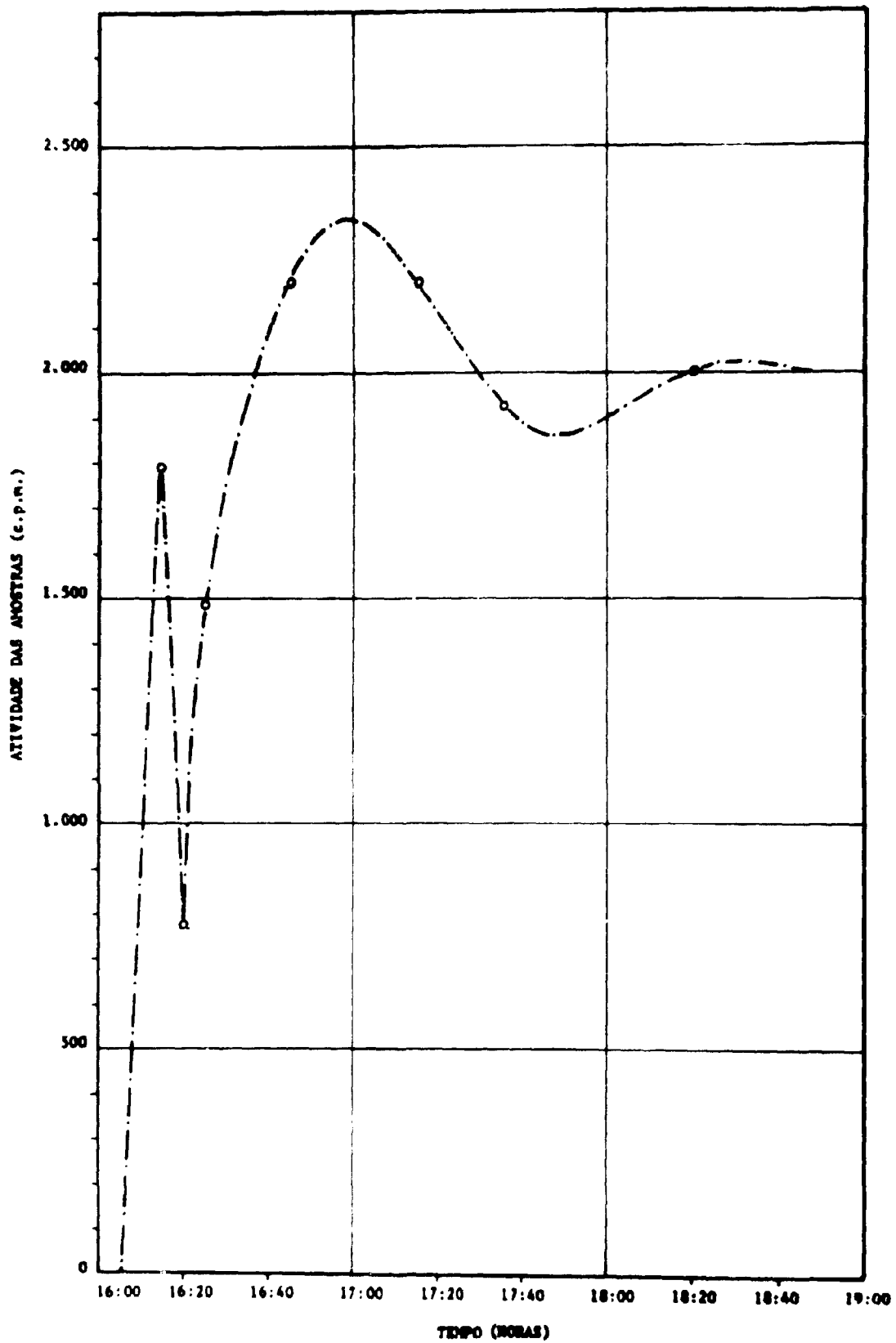


FIG. 11 - VARIACO DE ATIVIDADE DURANTE O PROCESSO DE DILUICO E REEQUILIBRAO DO TRAADOR (CLULA 3).

TABELA 2

RESULTADOS DOS ENSAIOS REALIZADOS NAS CÉLULAS 3 e 4

DATA DE AMOSTRAGEM dias	DATA DE CONTAGEM	CONTAGEM TOTAL			FUNDO cpm	CONTAGEM LÍQUIDA		
		n _p	n ₃	n ₄		n _p	n ₃	n ₄
		cpm	cpm	cpm		cpm	cpm	cpm
0	15/10	2370	1964	2207	124	2246	1840	2083
1	21/10	2160	1802	2034	124	2036	1678	1910
2	21/10	2160	1823	2034	124	2036	1699	1910
3	21/10	2160	1830	2045	124	2036	1706	1921
4	21/10	2160	1806	2038	124	2036	1682	1914
5	21/10	2160	1813	2048	124	2036	1689	1924
6	21/10	2160	1829	2023	124	2036	1705	1899
7	28/10	1912	1601	1795	136	1776	1465	1659
8	28/10	1912	1590	1781	136	1776	1454	1645
9	28/10	1912	1612	1810	136	1776	1476	1674
10	28/10	1912	1563	1773	136	1776	1427	1637
11	28/10	1912	1576	1793	136	1776	1440	1657
12	28/10	1912	1585	1783	136	1776	1449	1647
13	28/10	1912	1590	1795	136	1776	1454	1659
14	04/11	1781	1492	1680	132	1649	1360	1548
15	04/11	1781	1483	1680	132	1649	1351	1548
16	04/11	1781	1475	1684	132	1649	1343	1552
17	04/11	1781	1484	1676	132	1649	1352	1544
18	04/11	1781	1480	1664	132	1649	1348	1532
19	04/11	1781	1472	1658	132	1649	1340	1526
20	04/11	1781	1473	1661	132	1649	1341	1529
21	11/11	1573	1325	1497	129	1444	1196	1368
22	11/11	1573	1322	1517	129	1444	1193	1388
23	11/11	1573	1343	1481	129	1444	1214	1352
24	11/11	1573	1335	1475	129	1444	1206	1346
25	11/11	1573	1340	1483	129	1444	1211	1354
26	11/11	1573	1311	1492	129	1444	1182	1363
27	11/11	1573	1303	1475	129	1444	1174	1346

TABELA 2 - (Cont.)

DATA DE AMOSTRAGEM dias	DATA DE CONTAGEM	CONTAGEM TOTAL			FUNDO cpm	CONTAGEM LÍQUIDA		
		n _p cpm	n ₃ cpm	n ₄ cpm		n _p cpm	n ₃ cpm	n ₄ cpm
28	18/11	1442	1195	1340	128	1314	1067	1212
29	18/11	1442	1188	1344	128	1314	1060	1216
30	18/11	1442	1189	1343	128	1314	1061	1215
31	18/11	1442	1190	1345	128	1314	1062	1217
32	18/11	1442	1183	1333	128	1314	1055	1205
33	18/11	1442	1194	1326	128	1314	1066	1198
34	18/11	1442	1187	1320	128	1314	1059	1192
35	25/11	1310	1067	1199	135	1175	932	1064
36	25/11	1310	1059	1195	135	1175	924	1060
37	25/11	1310	1066	1197	135	1175	931	1062
38	25/11	1310	1066	1205	135	1175	931	1070
39	25/11	1310	1082	1186	135	1175	947	1051
40	25/11	1310	1074	1179	135	1175	939	1044
41	25/11	1310	1076	1195	135	1175	941	1060
42	01/12	1174	1000	1108	132	1042	868	976
43	01/12	1174	979	1101	132	1042	847	969
44	01/12	1174	980	1112	132	1042	848	980
45	01/12	1174	978	1098	132	1042	846	966
46	01/12	1174	982	1106	132	1042	850	974
47	01/12	1174	985	1092	132	1042	853	960

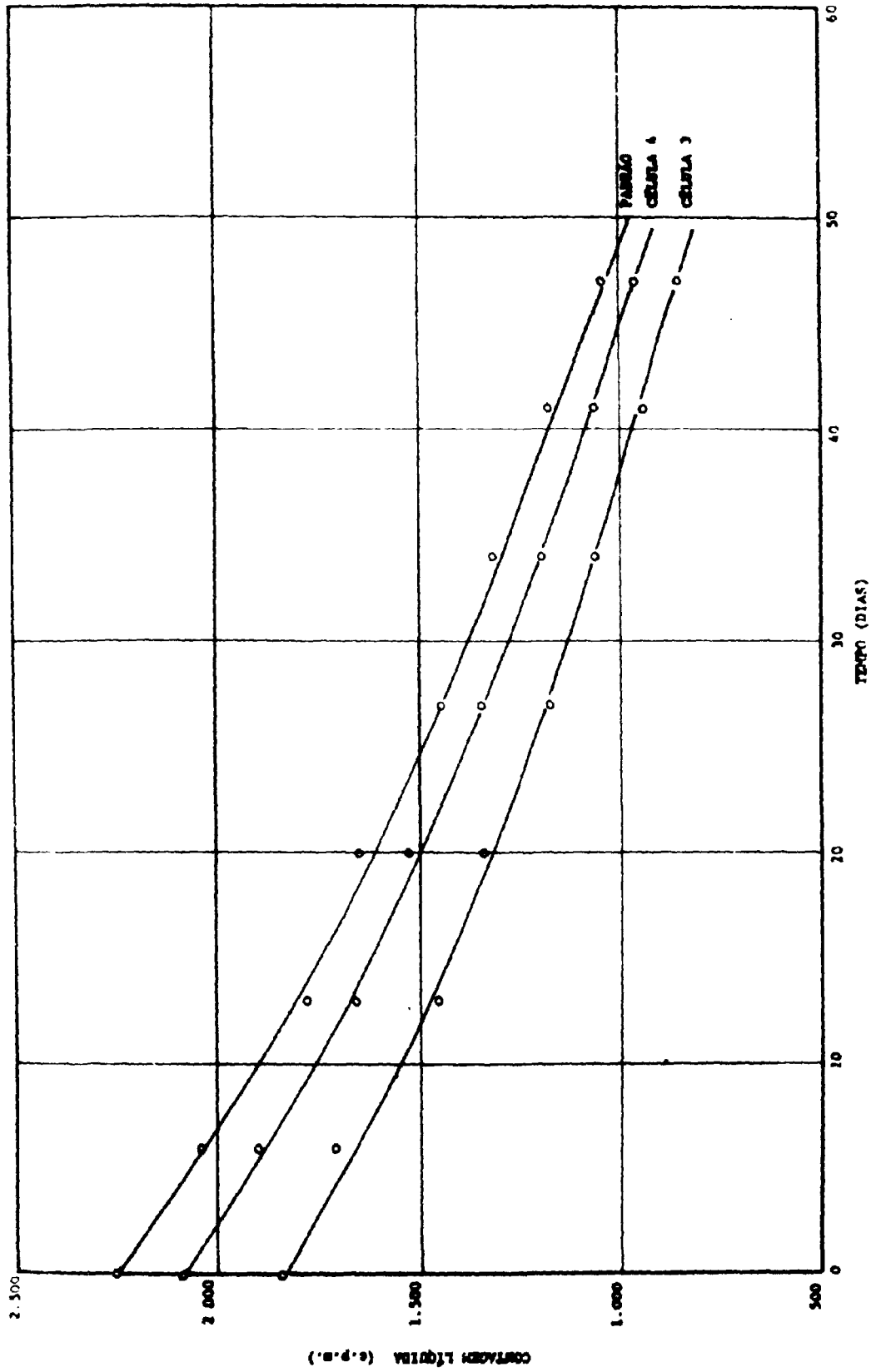


FIG. 12 - INTERPOLAÇÃO GRÁFICA DOS DADOS EXPERIMENTAIS.

TABELA 3
ANÁLISES DOS DADOS EXPERIMENTAIS

DATA DE AMOSTRAGEM (dias)	$\frac{n_p}{n_3}$	$\frac{n_p}{n_3} - \frac{\bar{n}_p}{n_3}$	$\left[\frac{n_p}{n_3} - \frac{\bar{n}_p}{n_3} \right]^2$	$\frac{n_p}{n_4}$	$\frac{n_p}{n_4} - \frac{\bar{n}_p}{n_4}$	$\left[\frac{n_p}{n_4} - \frac{\bar{n}_p}{n_4} \right]^2$
		$\times 10^{-3}$	$\times 10^{-6}$		$\times 10^{-3}$	$\times 10^{-6}$
0	1,22065	+ 4,61	21,252	1,07825	+ 0,38	0,146
1	1,21335	+ 11,91	141,848	1,06597	+ 11,90	141,562
2	1,19835	+ 26,91	724,148	1,06597	+ 11,90	141,562
3	1,19343	+ 31,83	1013,149	1,05986	+ 18,01	324,288
4	1,21046	+ 14,80	219,040	1,06374	+ 14,13	199,600
5	1,20545	+ 19,81	392,436	1,05821	+ 19,66	386,437
6	1,19413	+ 31,13	969,077	1,07214	+ 5,73	32,810
7	1,21229	+ 12,97	168,221	1,07052	+ 7,35	53,993
8	1,22146	+ 3,80	14,440	1,07964	+ 1,77	3,140
9	1,20325	+ 22,01	484,440	1,06093	+ 16,94	286,896
10	1,24457	+ 19,31	372,876	1,08491	+ 7,04	49,590
11	1,23333	+ 8,07	65,125	1,07182	+ 6,05	36,578
12	1,22567	+ 0,41	0,168	1,07832	+ 0,45	0,204
13	1,22146	+ 3,80	14,440	1,07052	+ 7,35	53,993
14	1,21250	+ 12,76	162,818	1,06525	+ 12,62	159,214
15	1,22058	+ 4,68	21,902	1,06525	+ 12,62	159,214
16	1,22785	+ 2,59	6,708	1,06250	+ 15,37	236,175
17	1,21967	+ 5,58	31,136	1,06800	+ 9,67	97,377
18	1,22329	+ 1,97	3,881	1,07637	+ 1,50	2,244
19	1,23060	+ 5,34	28,516	1,08060	+ 2,73	7,464
20	1,22968	+ 4,42	19,536	1,07848	+ 0,61	0,375
21	1,20736	+ 17,90	320,410	1,05556	+ 22,31	497,647
22	1,21039	+ 14,87	221,117	1,04035	+ 37,52	1407,600
23	1,18946	+ 36,80	1281,640	1,06805	+ 9,82	96,393
24	1,19735	+ 27,91	778,968	1,07281	+ 5,06	25,583
25	1,19240	+ 32,86	1079,780	1,06647	+ 11,40	129,914
26	1,22166	+ 3,60	12,960	1,05943	+ 18,44	339,960
27	1,22998	+ 4,72	22,278	1,07281	+ 5,06	25,583

TABELA 3 - (Cont.)

DATA DE AMOSTRAGEM (dias)	$\frac{n_p}{n_3}$	$\frac{n_p}{n_3} - \frac{\bar{n}_p}{n_3}$	$\left[\frac{n_p}{n_3} - \frac{\bar{n}_p}{n_3} \right]^2$	$\frac{n_p}{n_4}$	$\frac{n_p}{n_4} - \frac{\bar{n}_p}{n_4}$	$\left[\frac{n_p}{n_4} - \frac{\bar{n}_p}{n_4} \right]^2$
		$\times 10^{-3}$	$\times 10^{-6}$		$\times 10^{-3}$	$\times 10^{-6}$
28	1,23149	+ 6,23	38,813	1,08416	+ 6,29	39,589
29	1,23962	+ 14,36	206,210	1,08059	+ 2,72	7,409
30	1,23845	+ 13,19	173,976	1,08148	+ 3,61	13,047
31	1,23729	+ 12,03	144,721	1,07970	+ 1,83	3,356
32	1,24550	+ 20,24	409,658	1,09046	+ 12,59	158,558
33	1,23265	+ 7,39	54,612	1,09683	+ 18,96	359,557
34	1,24079	+ 15,53	241,181	1,10235	+ 24,48	599,368
35	1,26073	+ 35,47	1258,121	1,10432	+ 26,45	699,708
36	1,27165	+ 46,39	2152,032	1,10849	+ 30,62	937,707
37	1,26208	+ 36,82	1355,712	1,10640	+ 28,53	814,075
38	1,26208	+ 36,82	1355,712	1,09813	+ 20,26	410,549
39	1,24076	+ 15,50	240,250	1,11798	+ 40,11	1608,973
40	1,25133	+ 26,07	679,645	1,12548	+ 47,61	2266,903
41	1,24867	+ 23,41	548,028	1,10849	+ 30,62	937,707
42	1,20046	+ 24,80	615,040	1,06762	+ 10,25	105,022
43	1,23022	+ 4,96	24,602	1,07533	+ 2,54	6,441
44	1,22877	+ 3,51	12,320	1,06327	+ 14,60	213,102
45	1,23168	+ 6,42	41,216	1,07867	+ 0,80	0,643
46	1,22588	+ 0,62	0,384	1,06982	+ 8,05	64,770
47	1,22157	+ 3,69	13,616	1,08542	+ 7,55	57,033

No cálculo do desvio normal de um valor isolado utilizou-se as seguintes fórmulas:

$$\sigma(n_p/n_3) = \left[\frac{1}{48} \sum (\Delta_3)_i^2 \right]^{1/2} \text{ cpm} \quad (26)$$

$$\sigma(n_p/n_4) = \left[\frac{1}{48} \sum (\Delta_4)_i^2 \right]^{1/2} \text{ cpm} \quad (27)$$

donde $(\Delta_3)_i = \left(\frac{\bar{n}_p}{n_3} \right) - \left(\frac{n_p}{n_3} \right)_i$

$$(\Delta_4)_i = \left(\frac{\bar{n}_p}{n_4} \right) - \left(\frac{n_p}{n_4} \right)_i$$

Obteve-se assim os valores:

$$\left(\frac{\bar{n}_p}{n_3} \right) = 1,22526; \quad \left(\frac{\bar{n}_p}{n_4} \right) = 1,07787$$

$$\sigma(n_p/n_3) = 0,019450 \quad \sigma(n_p/n_4) = 0,017199$$

Os resultados da tabela 3, foram analisados na forma de gráficos nas figuras 13, 14 e 15 (a e b).

A tabela 4 e as figuras 16 e 17, permitem comparar os resultados anteriores com os obtidos por interpolação gráfica dos dados experimentais (fig. 12).

4.3.0 INTERPRETAÇÃO DE RESULTADOS

A dispersão que se observa entre os pontos de cada série de valores experimentais n_p/n_3 e n_p/n_4 , nos gráficos das figuras 13 e 14, permite supor que se trata de uma distribuição puramente estatística em torno dos correspondentes médios calculados pelas equações (24) e (25).

Esta suposição está, em princípio, de acordo com os gráficos a) e b), da figura 15, que tem o aspecto de uma distribuição normal ou gaussiana de um grande número de observações, quando se mede repetidamente um parâmetro fixo.

Por outro lado, os gráficos das figuras 16 e 17 obtidos por interpolação e leitura gráfica de valores experimentais, durante quase 8 semanas de ensaios, não mostram nenhuma tendência de afastar-se sensivelmente do valor médio.

Aceitando-se então que o grau de diluição se manteve estável no decorrer de 48 dias de

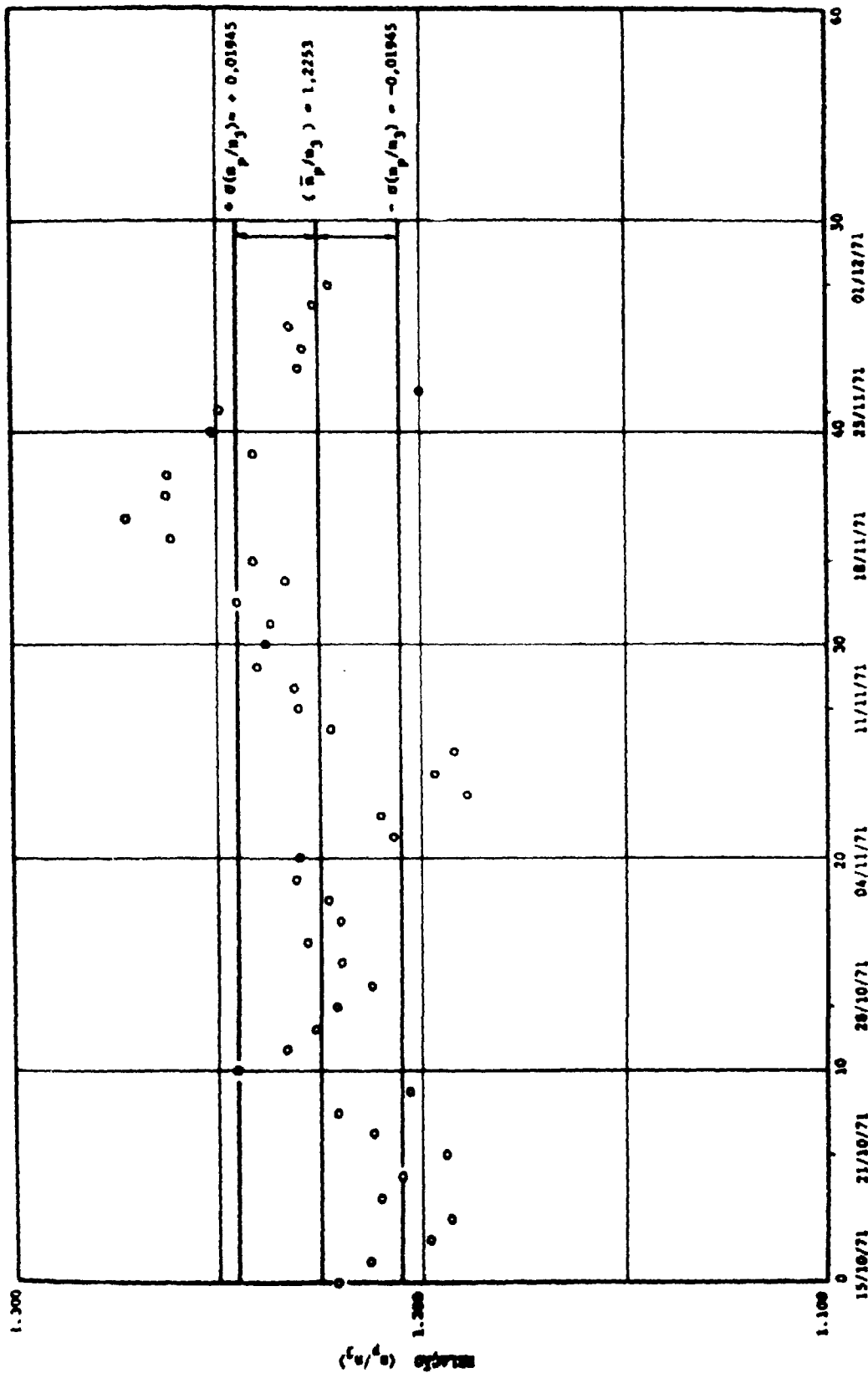


FIG. 13 - AMOSTRAGEM NORMALISADA DA CELULA 3.

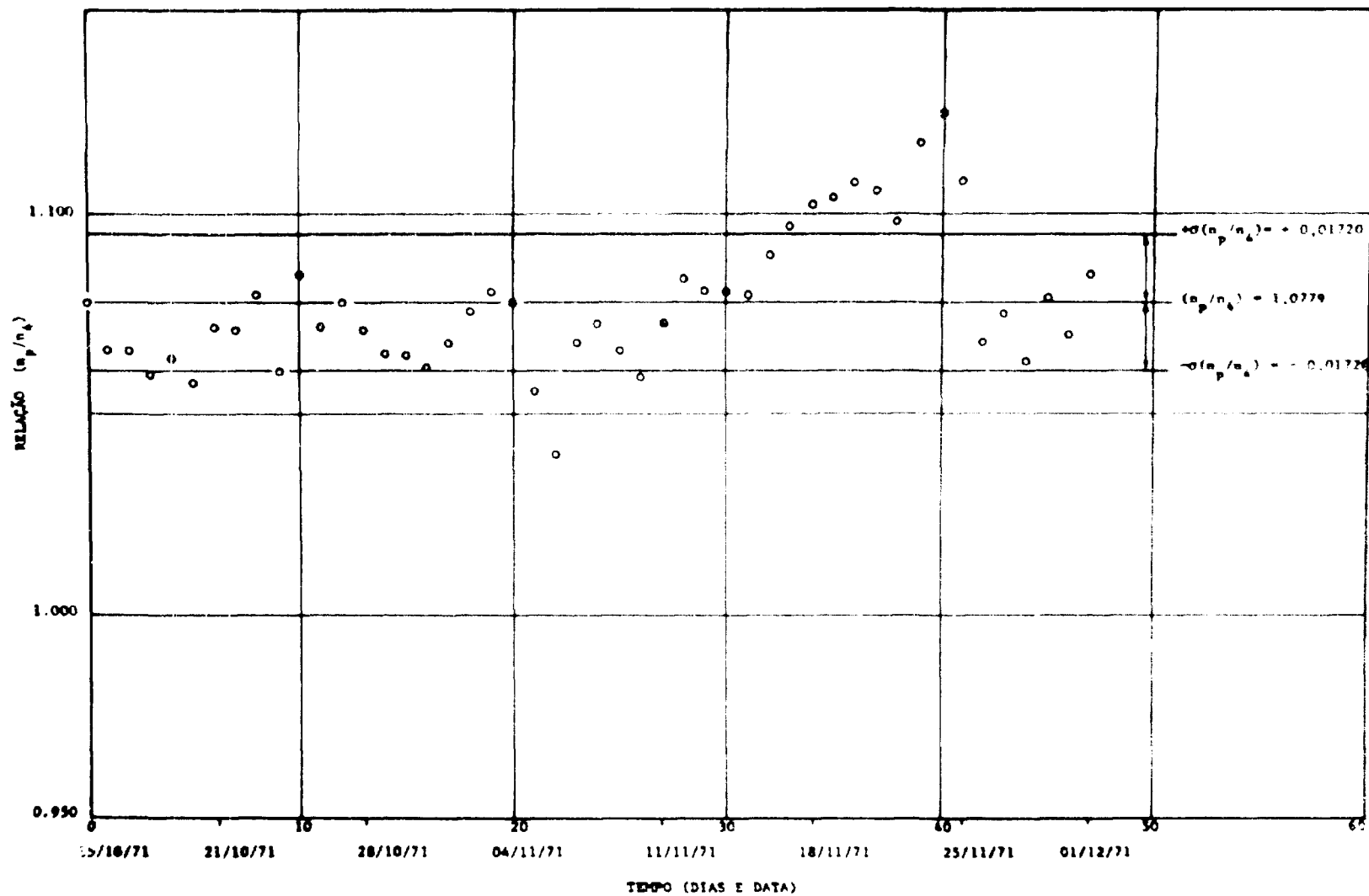


FIG. 14 - AMOSTRAGEM NORMALISADA DA CÉLULA 4.

TABELA 4

VALORES OBTIDOS A PARTIR DA INTERPOLAÇÃO GRÁFICA DA FIG. 12

TEMPO DE AMOSTRAGEM (dias)	n_3 cpm	n_4 cpm	n_p cpm	n_p/n_3	n_p/n_4
0	1835	2075	2245	1,2234	1,0819
1	1805	2040	2210	1,2244	1,0833
2	1775	2005	2170	1,2225	1,0823
3	1745	1975	2130	1,2206	1,0785
4	1715	1940	2095	1,2216	1,0799
5	1685	1910	2060	1,2237	1,0785
6	1655	1875	2025	1,2236	1,0800
7	1630	1845	1990	1,2208	1,0786
8	1600	1815	1960	1,2250	1,0799
9	1570	1785	1925	1,2261	1,0784
10	1545	1755	1890	1,2233	1,0769
11	1520	1725	1860	1,2237	1,0783
12	1495	1695	1830	1,2241	1,0796
13	1470	1670	1800	1,2245	1,0778
14	1445	1645	1770	1,2249	1,0760
15	1425	1615	1745	1,2246	1,0805
16	1400	1590	1715	1,2250	1,0786
17	1380	1565	1690	1,2246	1,0799
18	1360	1540	1665	1,2243	1,0812
19	1340	1520	1640	1,2239	1,0789
20	1320	1495	1615	1,2235	1,0803
21	1300	1475	1590	1,2231	1,0780
22	1280	1455	1565	1,2226	1,0756
23	1260	1430	1540	1,2222	1,0769
24	1240	1410	1520	1,2258	1,0780
25	1220	1390	1495	1,2254	1,0755
26	1205	1365	1475	1,2241	1,0806
27	1185	1345	1455	1,2278	1,0818

TABELA 4 - (Cont.)

TEMPO DE AMOSTRAGEM (dias)	n_3 cpm	n_4 cpm	n_p cpm	n_p/n_3	n_p/n_4
28	1170	1325	1430	1,2222	1,0792
29	1150	1305	1410	1,2261	1,0804
30	1130	1285	1385	1,2257	1,0778
31	1115	1205	1365	1,2242	1,0790
32	1095	1245	1340	1,2237	1,0763
33	1080	1225	1320	1,2222	1,0775
34	1065	1205	1300	1,2206	1,0788
35	1045	1185	1280	1,2249	1,0802
36	1030	1165	1260	1,2233	1,0815
37	1010	1145	1235	1,2228	1,0786
38	995	1125	1215	1,2211	1,0800
39	980	1110	1195	1,2194	1,0766
40	965	1090	1175	1,2176	1,0780
41	945	1070	1155	1,2222	1,0794
42	930	1050	1135	1,2204	1,0809
43	915	1035	1115	1,2186	1,0773
44	900	1015	1095	1,2167	1,0788
45	885	1000	1080	1,2203	1,0800
46	870	980	1060	1,2184	1,0816
47	855	960	1040	1,2164	1,0833

ensaio, praticamente há poucas horas de alcançada a homogeneização total do traçador, calculou-se as massas de mercúrio de ambas as células Q_3 e Q_4 , com os respectivos valores médios das relações n_p/n_3 e n_p/n_4 utilizando a equação (8).

Resultou:

$$\bar{Q}_3 = \frac{1,2253}{1,7 \times 10^{-3}} \cdot 3,370 - 3,370 = 2425,607 \text{ kg}$$

$$\bar{Q}_4 = \frac{1,0779}{1,7 \times 10^{-3}} \cdot 3,370 - 3,370 = 2133,408 \text{ kg}$$

Os erros normais relativos de \bar{Q}_3 e \bar{Q}_4 são iguais aos respectivos erros normais relativos das relações médias (\bar{n}_p/n_3) e (\bar{n}_p/n_4) .

Os desvios normais das médias são:

$$\sigma\left(\frac{\bar{n}_p}{n_3}\right) = \frac{1}{\sqrt{48}} \cdot \sigma\left(\frac{n_p}{n_3}\right) = \frac{0,019450}{\sqrt{48}} = 2,81 \times 10^{-3}$$

$$\sigma\left(\frac{\bar{n}_p}{n_4}\right) = \frac{1}{\sqrt{48}} \cdot \sigma\left(\frac{n_p}{n_4}\right) = \frac{0,017199}{\sqrt{48}} = 2,48 \times 10^{-3}$$

Portanto os erros percentuais das massas \bar{Q}_3 e \bar{Q}_4 resultaram:

$$\Delta \bar{Q}_3 \% = 100 \frac{\sigma\left(\frac{\bar{n}_p}{n_3}\right)}{\left(\frac{\bar{n}_p}{n_3}\right)} = \frac{100 \times 2,81 \times 10^{-3}}{1,225} = 0,23\%$$

$$\Delta \bar{Q}_4 \% = 100 \frac{\sigma\left(\frac{\bar{n}_p}{n_4}\right)}{\left(\frac{\bar{n}_p}{n_4}\right)} = \frac{100 \times 2,50 \times 10^{-3}}{1,078} = 0,23\%$$

Finalmente os valores de Q_3 e Q_4 obtidos como média das 48 medições devem ser expressos neste caso como:

$$\bar{Q}_3 = 2.425,607 \pm 0,23\% = 2.425,607 \pm 5,6 \text{ kg}$$

$$\bar{Q}_4 = 2.133,408 \pm 0,23\% = 2.133,408 \pm 4,9 \text{ kg}$$

Para uma determinação isolada da massa Q , como ocorreria em uma aplicação rotineira do método, o erro nas mesmas condições do presente ensaio, seria $\sqrt{48}$ vezes maior que o indicado para a medida média (1,6%).

5.0.0 CONCLUSÕES E COMENTÁRIOS

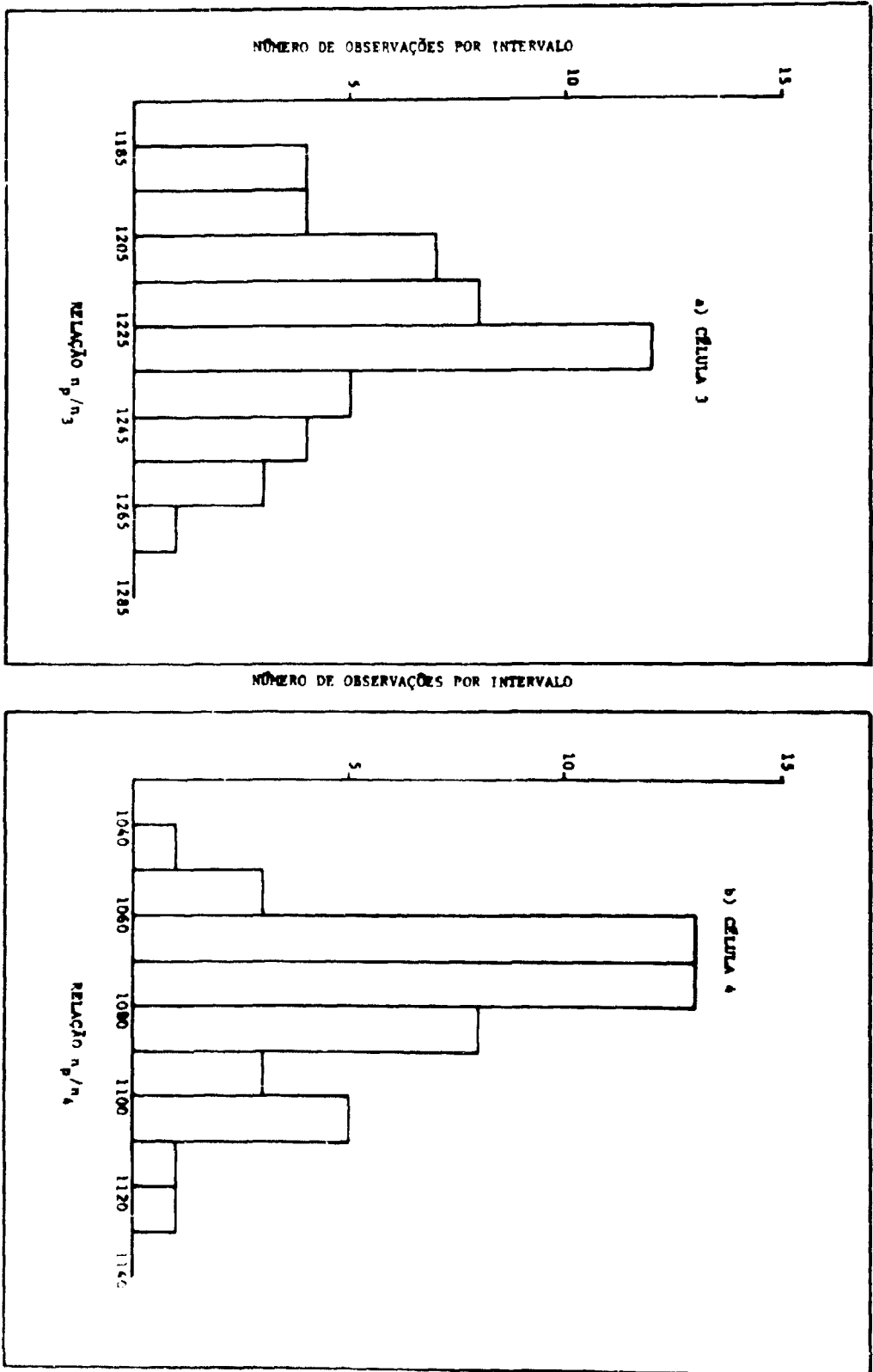


FIG. 13 - DISTRIBUIÇÃO DAS RELAÇÕES, n_p/n_3 E n_p/n_4 PARA UM INTERVALO $\Delta(n_p/n_j) = 0,01$

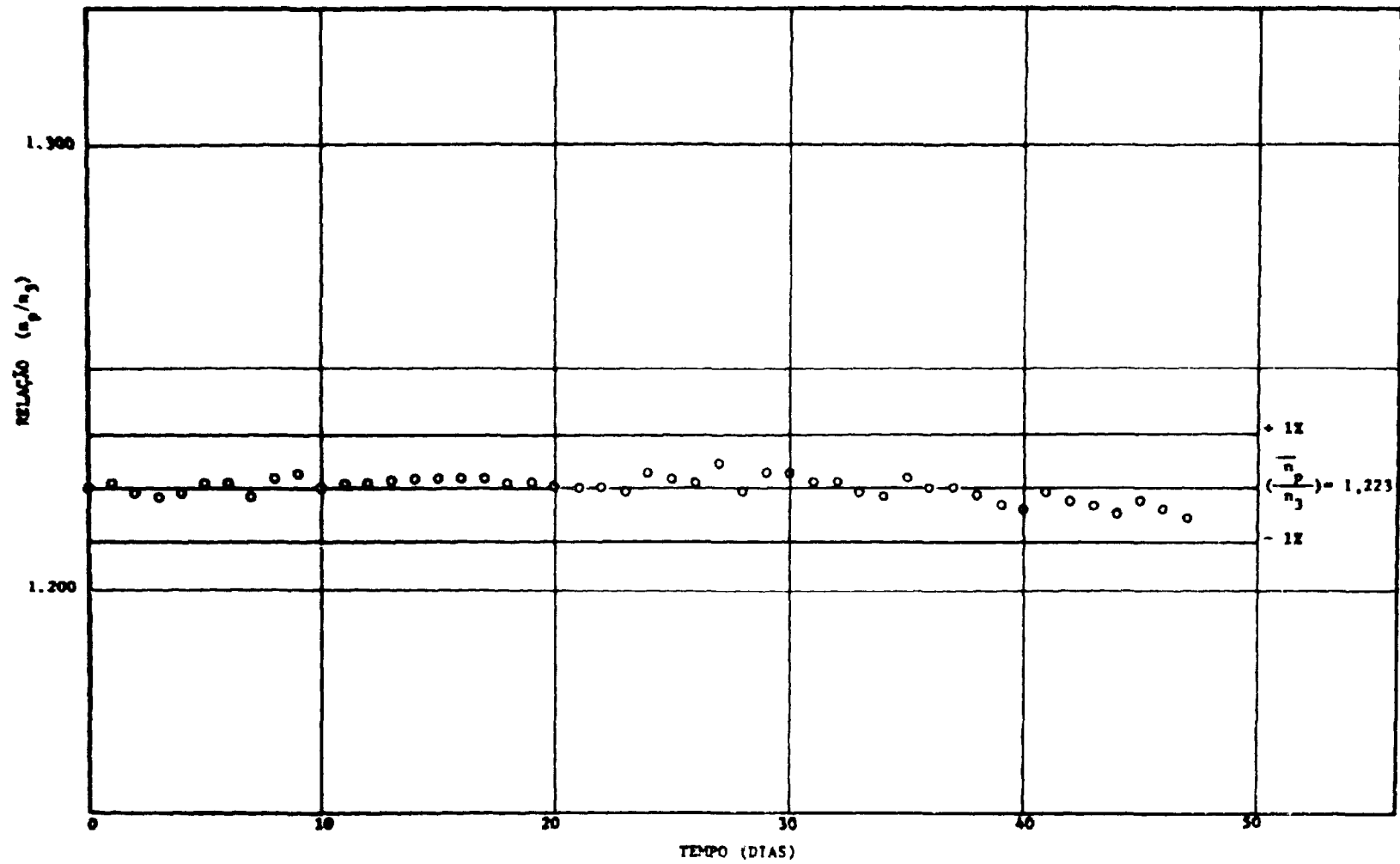
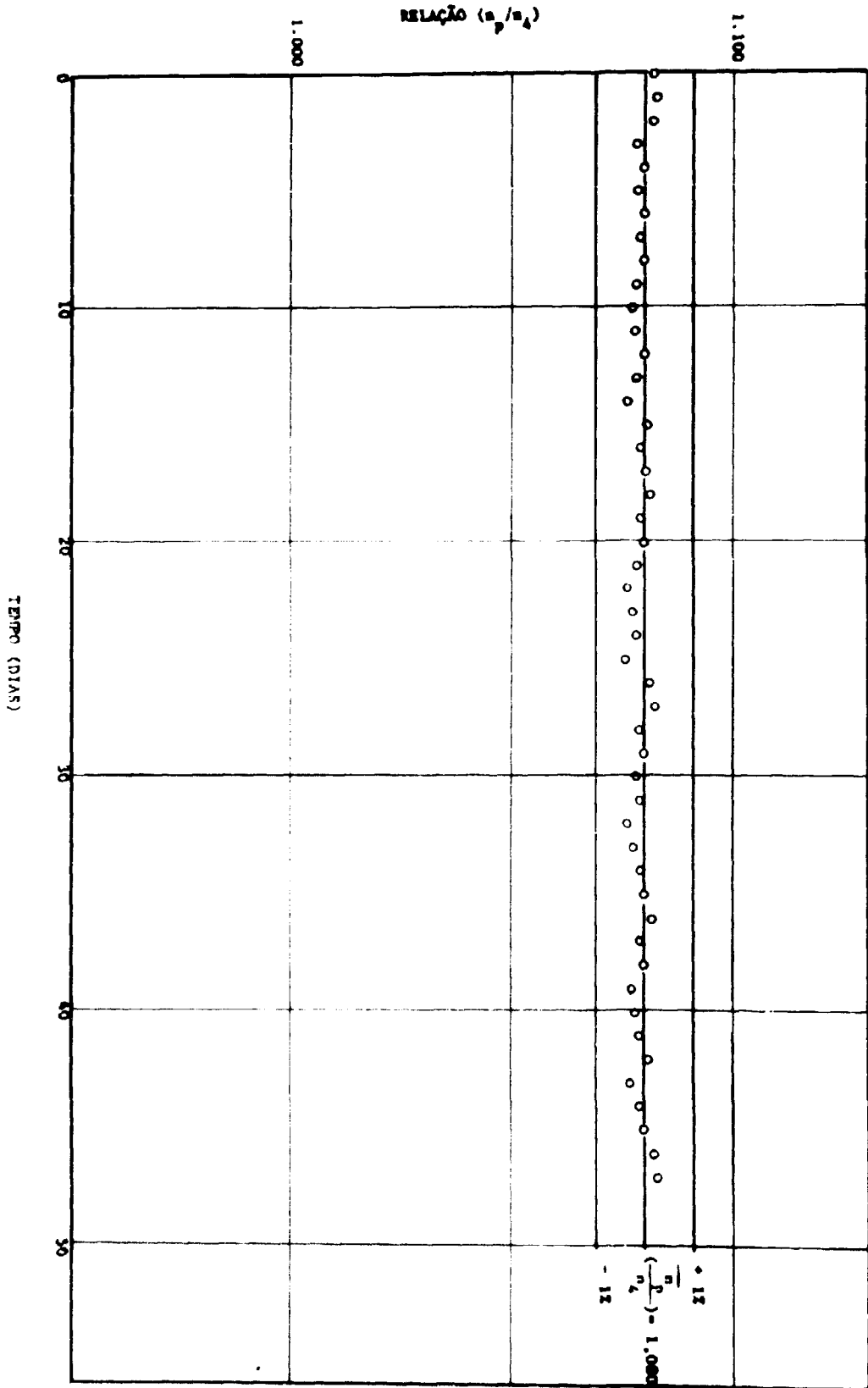


FIG. 16 - RELAÇÃO n_p/n_3 A PARTIR DA INTERPOLAÇÃO GRÁFICA (CELULA 3).

FIG. 17 - RELAÇÃO n_p/n_A A PARTIR DA INTERPOLAÇÃO GRÁFICA (CELULA 4)



O estudo preliminar demonstrou que decorridas 24 horas após a injeção do mercúrio radioativo nas células, o efeito de uma diluição lenta do traçador na amálgama em fase sólida, se é que realmente existe tal processo, estaria compreendido dentro do erro relativo experimental de $\pm 1,6\%$ para uma medida isolada.

É provável que com melhor precisão das leituras de atividade (aumentando-se os tempos de contagem das amostras, padrões e radiação de fundo), o limite de erro suscetível de ser atribuído a uma eventual influência do amálgama seria menor que o obtido no presente estudo.

Note-se que o erro normal experimental de $\pm 1,6\%$ se aproxima ao valor $\pm 1,41\%$ que se obteria por aplicação da equação (11) fazendo $n_T = 10.000$ contagens.

Quer dizer que a maior contribuição ao erro total calculado, provém do erro estatístico das medidas de radioatividade cometido neste caso. Esta conclusão reforça a teoria de que a amálgama de ferro não afeta significativamente os resultados.

O ensaio provou também que com mínimas modificações a técnica utilizada pode estender-se com resultados satisfatórios e melhor precisão a um grande número de células.

Esta conclusão foi constatada na prática, durante a segunda etapa dos trabalhos, consistentes na medição simultânea do mercúrio imobilizado em 71 células eletrolíticas.

A descrição dessa etapa e os resultados obtidos, são apresentados seguidamente no Apêndice deste relatório (Seção 6.0.0).

6.0.0. APÊNDICE: "DETERMINAÇÃO DE MERCÚRIO IMOBILIZADO NAS CÉLULAS ELETROLÍTICAS S50, HVB e LH15"

6.1.0 PREPARAÇÃO DAS SOLUÇÕES

6.1.1 SOLUÇÃO PRIMÁRIA

Com o mercúrio irradiado no reator IEA-R1 preparou-se nos laboratórios da Divisão de Aplicação de Radioisótopos na Engenharia e na Indústria (DAREI), uma solução primária de 6.013 gramas de mercúrio ativo.

Mediante um ensaio de diluição determinou-se por cálculo, que a atividade específica dessa solução corresponderia, no sistema de medição utilizado, a uma taxa de contagem de $1,48 \times 10^7$ cps.

6.1.2 SOLUÇÃO SECUNDÁRIA

Preparou-se a solução secundária nos laboratórios da Eletro Cloro S.A., misturando-se a solução primária com mercúrio estável, em uma proporção previamente calculada para:

- a) obter uma taxa de contagem da ordem de 600 cps para as amostras;
- b) obter uma massa de mercúrio ativo suficiente para permitir o fracionamento dos volumes a injetar e a preparação dos padrões.

6.2.0 PREPARAÇÃO DOS PADRÕES

Para garantir um erro inferior a 0,4% na determinação do peso de mercúrio nas células eletrolíticas, calculou-se uma relação de diluição que proporcionasse uma taxa de contagem para os padrões da ordem de 1.000 cps. Com base nessa relação de diluição e para controlar a operação de pesagem preparou-se separadamente seis (6) padrões cujos dados constam na tabela IV.

Uma vez comprovada por este método a precisão das pesagens e para obter padrões de igual atividade específica, misturou-se homogeneamente em um mesmo recipiente os volumes dos seis frascos.

Fracionou-se novamente a massa de mercúrio resultante da mistura anterior em seis partes iguais, configurando assim seis padrões definitivos, todos eles com a mesma relação de diluição:

$$r = 2,4047 \times 10^{-3}$$

6.3.0 FRACIONAMENTO DA SOLUÇÃO SECUNDÁRIA E INJEÇÃO NAS CÉLULAS

Os pesos de mercúrio ativo previstos para as injeções nas células eletrolíticas, foram obtidos fracionando-se a solução secundária em porções de volume constante.

Para serem usados nessa operação construíram-se na Eletro Cloro S.A., quatro (4) frascos para separação de volumes constantes: dois (2) com capacidade aproximada de 3 kg e dois (2) com capacidade aproximada de 1,5 kg.

Após os ensaios prévios de reprodutibilidade escolheram-se os frascos de números 2 e 3 para separar os pesos de mercúrio à injetar nas células de 1 e 2 toneladas, respectivamente.

Durante a operação de injeção controlou-se também estatisticamente a regularidade dos pesos assim obtidos. Os resultados deste controle estão resumidos na tabela V.

As injeções foram feitas com um dispositivo construído na Eletro Cloro S.A., que permitiu a regulagem precisa do tempo de injeção, (em torno de 5 minutos).

6.4.0 CONTAGEM DAS AMOSTRAS

Decorridos vinte dias da data de injeção, iniciou-se a retirada das amostras para a contagem. A contagem de cada amostra obedeceu a seguinte sequência:

- contagem da amostra
- contagem do padrão
- contagem da amostra
- contagem do "background"
- contagem da amostra

O tempo de medida para cada uma das contagens foi 17 minutos.

Utilizou-se simultaneamente três sistemas de medição, cada um composto por:

TABELA I

CÉLULAS: LH 15						PESO DE Hg INJETADO: 1500,60 gramas						
CÉLULA	CONTAGENS em 17 min.					RET. 1 kg	ADIÇÃO 1 kg	RET. 2 kg	ADIÇÃO 2 kg	PESO DE Hg (cg)	ERRO (2σ)	
	AMOSTRA Nº			PADRÃO	B GROUND						kg	%
	1	2	3									
1	766.820	766.650	767.560	1.019.260	2.280	17,00	0,00	0,00	0,00	828,35	1,98	0,24
2	585.310	584.870	584.690	1.041.150	4.090	35,10	0,00	0,00	0,00	1.112,60	2,77	0,25
3	678.580	675.410	674.640	1.072.950	1.660	14,60	0,00	0,00	0,00	987,53	2,37	0,24
4	661.350	660.330	654.340	986.280	3.440	13,90	0,00	0,00	0,00	934,51	2,32	0,25
5	605.490	604.730	605.850	1.015.680	2.310	2,00	0,00	0,00	0,00	1.047,11	2,61	0,25
6	541.510	542.150	541.430	1.011.730	2.210	15,00	0,00	0,00	0,00	1.166,26	2,97	0,25
7	663.230	661.990	663.260	1.041.720	4.310	18,00	0,00	0,00	0,00	981,51	2,39	0,24
8	595.720	597.830	599.520	1.013.890	2.300	1,00	0,00	0,00	0,00	1.058,71	2,64	0,25
9	635.760	636.790	634.670	1.052.530	1.670	0,00	0,00	0,00	0,00	1.032,70	2,52	0,24
10	614.940	619.120	616.690	1.036.340	3.350	15,50	34,50	27,00	0,00	1.014,04	2,50	0,25
11	602.850	601.700	600.630	1.009.400	2.260	13,50	0,00	0,00	0,00	1.046,38	2,61	0,25
12	célula fora de funcionamento											
13	626.510	623.030	624.120	1.074.290	1.670	20,60	0,00	0,00	0,00	1.073,07	2,61	0,24
14	554.530	553.650	552.340	1.057.090	1.720	34,00	0,00	0,00	0,00	1.192,02	2,98	0,25
15	338.880	338.900	337.240	635.960	1.520	6,30	0,00	0,00	0,00	1.173,91	3,77	0,32
16	344.160	335.320	337.660	581.910	1.420	6,30	0,00	0,00	0,00	1.071,38	3,54	0,33
17	600.530	600.090	601.430	979.000	3.420	17,00	0,00	0,00	0,00	1.017,78	2,57	0,25
18	594.650	596.270	591.630	1.011.250	3.170	16,00	34,50	12,00	0,00	1.027,82	2,57	0,25
19	364.770	365.080	365.380	634.140	1.550	14,00	0,00	0,00	0,00	1.084,38	3,44	0,32
20	célula fora de funcionamento											
21	643.160	644.730	641.890	1.052.470	1.670	20,00	34,50	0,00	0,00	985,30	2,40	0,24
22	516.740	518.270	517.470	999.540	2.160	5,30	0,00	0,00	0,00	1.206,22	3,11	0,26

TABELA II

CÉLULAS: S 50						PESO DE Hg INJETADO: 2997,50 gramas							
CÉLULA	CONTAGENS em 17 mirr.					RET. 1 kg	ADIÇÃO 1 kg	RET. 2 kg	ADIÇÃO 2 kg	PESO DE Hg (kg)	ERRO (2σ)		
	AMOSTRA N°			PADRÃO	B.GROUND						kg	%	
	1	2	3										
1	686.080	686.760	683.530	1.041.230	1.670	12,60	0,00	0,00	0,00	1.890,20	4,56	0,24	
2	631.400	629.320	630.290	1.037.130	1.760	1,00	0,00	0,00	0,00	2.050,18	5,03	0,24	
3	691.400	688.490	691.280	1.037.580	1.770	18,50	0,00	0,00	0,00	1.871,95	4,52	0,24	
4	662.510	663.710	665.995	1.038.200	1.640	5,40	34,50	0,00	0,00	1.912,90	4,64	0,24	
5	618.170	618.410	617.550	968.180	3.210	22,80	34,50	0,00	0,00	1.918,43	4,84	0,25	
6	634.560	635.500	633.070	996.250	2.270	9,50	34,50	0,00	0,00	1.922,42	4,77	0,25	
7	703.970	702.440	702.550	1.035.700	1.850	3,20	0,00	0,00	0,00	1.835,00	4,42	0,24	
8	637.110	635.700	636.370	1.042.040	1.610	37,00	34,50	0,00	0,00	2.004,90	4,90	0,24	
9	626.860	626.120	626.110	964.970	3.200	0,00	34,50	0,00	0,00	1.886,30	4,75	0,25	
10	625.870	623.160	622.420	992.400	2.270	13,00	103,50	0,00	0,00	1.878,15	4,68	0,25	
11	692.170	692.150	691.330	1.034.220	1.700	7,00	103,50	0,00	0,00	1.757,85	4,24	0,24	
12	661.090	659.390	659.480	1.021.450	1.700	11,00	0,00	0,00	0,00	1.927,94	4,71	0,24	
13	651.550	652.010	651.300	1.038.090	1.880	8,00	34,50	0,00	0,00	1.950,27	4,75	0,24	
14	652.330	651.460	650.550	1.019.800	1.790	28,00	69,00	10,00	0,00	1.880,21	4,61	0,25	
15	684.290	684.560	684.570	1.034.970	1.880	0,00	34,50	13,00	34,50	1.815,08	4,39	0,24	
16	577.510	577.000	577.850	1.021.990	1.760	5,00	34,50	0,00	0,00	2.171,46	5,44	0,25	
17	653.870	653.960	653.510	1.032.630	1.830	3,00	0,00	0,00	0,00	1.967,84	4,80	0,24	
18	célula fora de funcionamento												
19	725.120	723.890	724.470	1.017.530	1.750	18,00	0,00	0,00	0,00	1.748,88	4,21	0,24	
20	619.200	619.440	618.810	990.690	1.950	6,00	69,00	0,00	0,00	1.924,64	4,81	0,25	
21	581.190	580.610	580.530	976.710	1.790	3,00	34,50	0,00	0,00	2.061,34	5,23	0,25	
22	612.450	612.780	611.030	943.670	2.290	3,10	0,00	0,00	0,00	1.921,29	4,89	0,25	
23	486.250	479.670	477.740	793.220	4.390	19,10	69,00	0,00	0,00	1.989,42	5,62	0,28	
24	629.970	629.110	628.500	939.860	2.340	11,00	34,50	6,40	0,00	1.826,54	4,63	0,25	
25	491.220	491.110	492.330	781.450	4.220	15,60	0,00	0,00	0,00	1.984,99	5,61	0,28	
26	633.450	632.060	631.600	988.510	1.940	25,50	0,00	0,00	0,00	1.947,66	4,85	0,25	

TABELA III

CÉLULAS: HVB						PESO DE Hg INJETADO: 2997,80 gramas						
CÉLULA	CONTAGENS em 17 min.					RET. 1 kg	ADIÇÃO 1 kg	RET. 2 kg	ADIÇÃO 2 kg	PESO DE Hg kg	ERRO (2σ)	
	AMOSTRA Nº			PADRÃO	B.GROUND						kg	%
	1	2	3									
1	494.790	493.450	495.300	783.350	4.160	0,00	103,50	0,00	0,00	1.874,42	5,29	0,28
2	609.250	611.380	610.480	987.300	1.930	11,10	0,00	0,00	0,00	2.015,90	5,05	0,25
3	592.740	593.450	592.040	972.880	1.970	4,00	0,00	0,00	0,00	2.045,76	5,18	0,25
4	573.260	573.020	572.870	976.080	1.880	4,00	0,00	0,00	0,00	2.123,26	5,40	0,25
5	541.070	539.640	539.360	935.510	2.370	10,00	69,00	0,00	0,00	2.091,27	5,46	0,26
6	527.780	530.020	527.430	975.300	1.910	7,00	0,00	0,00	0,00	2.301,74	5,95	0,26
7	468.850	468.710	463.830	748.020	4.190	0,20	0,00	0,00	0,00	2.000,01	5,79	0,29
8	550.780	550.340	550.830	961.710	1.760	0,00	0,00	0,00	0,00	2.177,20	5,61	0,26
9	588.200	586.620	586.330	930.550	2.290	13,00	0,00	0,00	0,00	1.975,91	5,09	0,26
10	587.250	587.960	586.440	973.890	1.920	0,00	69,00	0,00	0,00	1.998,19	5,06	0,25
11	523.700	522.070	522.000	960.130	1.740	7,00	0,00	0,00	0,00	2.290,84	5,96	0,26
12	510.010	510.000	509.530	926.330	2.340	0,00	0,00	0,00	0,00	2.266,65	6,00	0,26
13	440.590	438.330	438.650	746.440	4.010	0,00	103,50	0,00	0,00	2.020,27	5,91	0,29
14	560.300	560.530	558.020	971.290	1.960	0,00	69,00	8,00	34,50	2.060,51	5,27	0,26
15	470.340	471.460	469.940	745.170	3.980	0,00	34,50	0,00	0,00	1.942,74	5,62	0,29
16	566.150	565.790	565.090	960.230	1.840	1,00	54,00	0,00	0,00	2.061,93	5,28	0,26
17	538.220	537.510	537.560	925.040	2.230	2,10	0,00	0,00	0,00	2.145,12	5,62	0,26
18	558.560	556.100	555.900	961.570	1.950	0,00	69,00	0,00	0,00	2.083,83	5,36	0,26
19	469.140	474.070	468.990	733.540	3.830	15,00	0,00	0,00	0,00	1.945,30	5,65	0,29
20	585.590	586.610	584.090	948.590	1.760	15,20	0,00	0,00	0,00	2.019,26	5,16	0,26
21	556.650	556.440	555.690	914.560	2.150	8,00	34,50	0,00	0,00	2.015,07	5,26	0,26
22	641.590	641.040	640.430	959.770	1.830	2,00	34,50	4,20	0,00	1.830,74	4,59	0,25
23	478.340	476.900	474.230	734.190	3.920	1,50	0,00	0,00	0,00	1.923,42	5,57	0,29
24	523.950	523.840	522.490	947.020	1.750	0,00	69,00	0,00	0,00	2.186,85	5,71	0,26
25	519.310	519.740	518.440	912.200	2.210	6,00	69,00	0,00	0,00	2.122,22	5,62	0,27
26	608.640	606.290	607.820	957.910	1.860	9,00	0,00	0,00	0,00	1.964,61	4,98	0,25

TABELA IV

PADRÃO nº	Hg ESTÁVEL (gramas)	Hg SECUND. (gramas)	CONTAGENS (cps)		
			C 1	C 2	C média
1	2992,77	7,2178	997	997	997
2	2992,75	7,2121	993	988	991
3	2992,79	7,2262	994	993	994
4	2992,77	7,2168	989	992	990
5	2992,76	7,2124	989	988	988
6	2992,80	7,2000	989	992	991
Soma	17956,64	43,2853			

TABELA V

CÉLULA LH 15 nº	PESO HG (g)	ERRO ABSOLUTO
1	1.500,890	+ 0,274
2	1.500,660	+ 0,044
8	1.500,745	+ 0,129
15	1.499,972	- 0,644
22	1.500,812	+ 0,196
Média dos pesos	1.500,616	
CÉLULA S 50 nº		
1	2.996,96	- 0,51
2	2.997,09	- 0,38
4	2.997,22	- 0,25
8	2.997,79	+ 0,32
15	2.998,30	+ 0,83
Média dos pesos	2.997,47	
CÉLULA HVB nº		
1	2.996,767	- 0,095
2	2.997,775	+ 0,013
8	2.998,504	+ 0,622
16	2.998,210	+ 0,448
24	2.997,675	- 0,087
Média dos pesos	2.997,762	

- 1 sonda com cristal de $\text{In}(\text{Tl})$ envolta por uma blindagem de chumbo de 6 cm de espessura;
- 1 recipiente para contagem das amostras, padrão e "background", configurando uma geometria infinita para o mercúrio ativo;
- 1 escalímetro BASC com analisador monocanal.

6.5.0 FÓRMULAS UTILIZADAS NOS CÁLCULOS

6.5.1 PESO DE Hg NAS CÉLULAS.

Considerando-se as possíveis alterações da massa original de mercúrio na célula entre a injeção do traçador e a retirada da amostra chega-se a seguinte expressão geral:

$$A = \frac{(P + Q) (P + Q - G_1 - G_2 + M_1 + M_2) (P + Q - G_1 + M_1)}{(P + Q - G_1 - G_2 + M_1) (P + Q - G_1)} \quad (I)$$

onde:

$$A = \frac{P n_t}{r \bar{n}_c}$$

- P = peso do Hg secundário injetado (kg);
- r = relação de diluição do padrão;
- n_t = taxa de contagem líquida do padrão (cps);
- \bar{n}_c = média da taxa de contagem líquida da amostra entre três medidas (cps);
- Q = peso de mercúrio da célula no momento da injeção (kg);
- G_1 = peso total retirado da célula antes da primeira adição (kg);
- G_2 = peso total retirado da célula entre a primeira e a segunda adição (kg);
- M_1 = peso total adicionado após a primeira retirada (kg);
- M_2 = peso total adicionado após a segunda retirada (kg);

Nos casos em que $M_1 = M_2 = 0$, a expressão (I) se reduz a $A = (P + Q)$ cuja solução é:

$$Q = A - P$$

Para os casos em que $M_2 \neq 0$, a expressão (I), se reduz a:

$$A = \frac{(P + Q) (P + Q - G_1 + M_1)}{(P + Q - G_1)}$$

dando origem a uma equação do 2º grau em $(P + Q)$, com solução:

$$Q = \frac{A \cdot M_1 + G_1 + \sqrt{(A \cdot M_1 + G_1)^2 - 4 G_1 A}}{2} - P \quad (II)$$

No caso mais geral em que $M_2 \neq 0$, a expressão (I) conduz à uma equação do 3º grau em

(P + Q), cuja solução é mais complexa.

Neste caso, definindo-se a função:

$$F(P + Q) = \frac{(P + Q)(P + Q - G_1 - G_2 + M_1 + M_2)(P + Q - G_1 + M_1)}{(P + Q - G_1 - G_2 + M_1)(P + Q - G_1)} - A$$

pode ser determinado por recorrência, um valor $(P + Q)_a$ tal que:

$$\left| \frac{(P + Q)_a - (P + Q)_s}{(P + Q)_s} \right| < 0,001$$

onde:

$(P + Q)_s$: solução verdadeira da expressão (I) ou seja:

$$F[(P + Q)_s] = 0$$

$(P + Q)_a$: valor finalmente acerto como solução da (I).

Portanto:

$$Q = (P + Q)_a - P$$

6.5.2. ERRO NO VALOR DO PESO Q CALCULADO.

Considerando-se que as medidas de atividade são os fatores que mais influenciam no erro da determinação de Q, e que:

$$Q = f(N_t/n_c)$$

o erro "standard" relativo resulta:

$$\frac{\sigma_Q}{Q} = \left[\frac{(N_t + N_b)}{(N_t - N_b)^2} + \frac{1}{3} \frac{(\bar{N}_c + N_b)}{(\bar{N}_c - N_b)^2} \right]^{1/2}$$

onde:

N_t : contagem acumulada no tempo T para o padrão;

\bar{N}_c : contagem média acumulada no tempo T para a amostra;

N_b : contagem acumulada no tempo T para o "background".

Finalmente o erro percentual para diferentes níveis de confiança resulta:

$$e_t(\%) = 100 K \frac{\sigma_Q}{Q}$$

Utilizou-se o valor $K = 2$ para uma confiança de 95,5% (erro 2σ).

6.6.0 PESO DE Hg NAS CÉLULAS:

Os valores obtidos nas medições, assim como os valores calculados para o peso de Hg nas células com seus respectivos erros, estão dispostos nas tabelas I, II e III.

Todos os cálculos numéricos foram processados no computador de mesa, HEWLETT-PACKARD – 9810 A, modelo 10, após a programação adequada.

ABSTRACT

The mercury content immobilized in the electrolytic cells of a soda Solvay factory, was measured by the radioisotopic dilution technique using ^{203}Hg as tracer (half-life 46,6 days; 81,5% of γ -rays with 279,2 keV).

This study was performed by the "Divisão de Aplicação de Radioisótopos na Engenharia e na Indústria" (DAREI), of the "Instituto de Energia Atômica" (IEA), with the effective collaboration of the "Eletro Cloro S/A" Central Laboratory (Rio Grande da Serra, S.P., Brazil)

The work was accomplished in two stages:

- 1) a preliminary study restricted to only two cells;
- 2) simultaneous measurement in the 72 cells of the Eletro Cloro's facility

The first test was intended for:

- a) investigating possible effects of a slow tracer diffusion into the amalgamated mercury layers, in both, the cell walls and bottom;
- b) determining the accuracy and precision of the employed system, as a function of the tracer activity and the measuring time;
- c) evaluating the requirements for the simultaneous measurement of 72 cells.

In order to clarify point a), the measurements were carried over 48 days. During that period, mercury was neither added to, nor extracted from the two cells, to avoid disturbances in the diffusion process, and errors in subsequent calculations.

The standard error for a single determination of mercury weight resulted in $\pm 1,6\%$, being the major contribution to this error due to the statistical fluctuations of the radioactive decay.

Within that tolerance, and after elapsed 24 hours from the injection of the radioactive mercury in the cells, no effect of the ^{203}Hg slow diffusion into the amalgam, was noticed.

The preliminary study help the planning and execution of the second stage, consisting in the simultaneous measurement of the mercury content in each one of the operating cells.

In this case, the mercury weight for each cell was determined with an error less than $\pm 0,5\%$, for 95,5% of confidence limit (2σ error)

This second part of the work, is described in the Appendix of the present report.

RÉSUMÉ

Le contenu de mercure immobilisé dans les cellules électrolytiques d'une usine de soude "Solvay", a été mesuré à l'aide de la technique de dilution radioisotopique, employant ^{203}Hg comme traceur (période de semidesintégration de 46,6 jours; énergie de 81,5% des rayons gama: 279 Kev)

Cette étude a été réalisée par la "Divisão de Aplicação de Radioisótopos na Engenharia e na Indústria" (DAREI) de l'Institut d'Énergie Atomique de São Paulo (IEA), avec la coopération effective du Laboratoire Central de l'usine Eletrocloro S.A. (Rio Grande da Serra, S.P., Brasil).

Le travail a été exécuté en deux étapes:

- 1) une étude préliminaire réalisée sur deux cellules
- 2) la mesure simultanée des 72 cellules de Electrocloro S/A

Le premier essai avait pour objectif:

- a) rechercher les effets possibles d'une diffusion lente du traceur dans les couches de mercure amalgamées dans les parois et le fond des cellules.
- b) déterminer l'exactitude et la précision du système utilisé, en fonction de l'activité du traceur et du temps de mesure.
- c) évaluer les critères nécessaires à la mesure simultanée des 72 cellules.

Afin d'éclairer le point a), des mesures ont été réalisées pendant 48 jours. Durant cette période on n'a pas ajouté ni retiré de mercure des cellules pour éviter les perturbations du processus de diffusion et les erreurs des calculs postérieurs.

L'erreur normale pour une détermination isolée du poids de mercure est de $\pm 1,6\%$; la plus grande contribution à cette erreur provient des fluctuations statistiques du processus de décroissance radioactive.

Dans les limites de cette tolérance, 24 heures après l'injection du mercure radioactif dans les cellules, aucun effet de diffusion lente du ^{203}Hg ne fut observé.

Prenant comme base cette étude préliminaire, une seconde étape a été programmée et exécutée. Elle consiste en la mesure simultanée du poids de mercure immobilisé dans chacune des cellules électrolytiques par opération.

Dans ce cas, le poids de mercure dans chaque cellule, a été déterminé avec une erreur inférieure à $0,5\%$ pour une probabilité de 95,5% (erreur 2 σ). La deuxième partie des travaux est décrite dans l'Annexe du présent rapport.

AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem ao Eng^o ALCIDES BRANCO DA SILVA, chefe do Laboratório Central da Eletro Cloro, sua efetiva e entusiasta participação no planejamento e execução dos trabalhos, e por ter proporcionado em seu laboratório, todas as facilidades para a culminação satisfatória dos ensaios.

BIBLIOGRAFIA

- 1 - ELETRO CLORO S.A., "Détermination par radioisotopes du poids de mercure immobilisé dans les cellules d'électrolyse - Mode opératoire à adopter pour appliquer la méthode", Documento FN 596, Industrias Químicas Electro Cloro S.A., Santos, Brasil.
- 2 - ERWALL, L.G., FORSBERG, H.G., LJUNGGREN, K., "Short - Lived Isotopes Used as Tracers in Industry (with Special Reference to Swedish Industry)", Seminar on the Practical Applications of Short - Lived Radioisotopes Produced in Small Research Reactors, Vienna 1962. Proc. Vol. 1, p. 229, Vienna 1963.
- 3 - GOMEZ RUIZ, H., ET AL. "Balance de Mercurio en Celdas Electrolíticas con Trazadores Radioactivos", Informe EN - 8/15, CNEA, Buenos Aires, Marzo 1969.

