

EUR 3894 d

Assoziation

Europäische Atomgemeinschaft - EURATOM

Kernforschungsanlage Jülich des Landes

Nordrhein-Westfalen e.V. KFA

**BILDUNG VON SCHWEFEL-35
IN NEUTRONENBESTRAHLTEN
REAKTOR-GRAPHIT**

von

M. LASER, E. MERZ und H. J. RIEDEL

1968



THTR 51

Bericht abgefasst bei KFA

Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V. - Deutschland

Assoziation Nr. 003-63-1 RGAD

HINWEIS

Das vorliegende Dokument ist im Rahmen des Forschungsprogramms der Kommission der Europäischen Gemeinschaften ausgearbeitet worden.

Es wird darauf hingewiesen, daß die Kommission der Europäischen Gemeinschaften, ihre Vertragspartner und die in deren Namen handelnden Personen :

keine Gewähr dafür übernehmen, daß die in diesem Dokument enthaltenen Informationen richtig und vollständig sind, oder daß die Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen, oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden und Verfahren nicht gegen gewerbliche Schutzrechte verstößt ;

keine Haftung für die Schäden übernehmen, die infolge der Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen, oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden oder Verfahren entstehen könnten.

Dieser Bericht wird in den auf der vierten Umschlagseite genannten Vertriebsstellen

zum Preise von DM 2.—	FF 2.50	FB 25.—	Lit. 310	Fl. 1.80
-----------------------	---------	---------	----------	----------

verkauft.

Es wird gebeten, bei Bestellungen die EUR-Nummer und den Titel anzugeben, die auf dem Umschlag jedes Berichts aufgeführt sind.

Gedruckt von L. Vanmelle
Brüssel, März 1968

Das vorliegende Dokument wurde an Hand des besten Abdruckes vervielfältigt, der zur Verfügung stand.

EUR 3894 d

FORMATION OF SULPHUR-35 IN NEUTRON-IRRADIATED REACTOR GRAPHITE by M. LASER, E. MERZ and H.J. RIEDEL

Association : European Atomic Energy Community — EURATOM
Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V. — KFA

THTR 51

Report prepared at the KFA — Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V. (Germany)

Association No. 003-63-1 RGAD

Brussels, March 1968 — 10 Pages — FB 25

In the neutron activation of different reactor-grade graphites, the formation of relative strong ^{35}S -radioactivities were observed. As the present investigation shows, their formation results from the nuclear reaction $^{35}\text{Cl}(n, p)^{35}\text{S}$ of the chlorine impurities present in most reactor

EUR 3894 d

FORMATION OF SULPHUR-35 IN NEUTRON-IRRADIATED REACTOR GRAPHITE by M. LASER, E. MERZ and H.J. RIEDEL

Association : European Atomic Energy Community — EURATOM
Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V. — KFA

THTR 51

Report prepared at the KFA — Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V. (Germany)

Association No. 003-63-1 RGAD

Brussels, March 1968 — 10 Pages — FB 25

In the neutron activation of different reactor-grade graphites, the formation of relative strong ^{35}S -radioactivities were observed. As the present investigation shows, their formation results from the nuclear reaction $^{35}\text{Cl}(n, p)^{35}\text{S}$ of the chlorine impurities present in most reactor

EUR 3894 d

FORMATION OF SULPHUR-35 IN NEUTRON-IRRADIATED REACTOR GRAPHITE by M. LASER, E. MERZ and H.J. RIEDEL

Association : European Atomic Energy Community — EURATOM
Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V. — KFA

THTR 51

Report prepared at the KFA — Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V. (Germany)

Association No. 003-63-1 RGAD

Brussels, March 1968 — 10 Pages — FB 25

In the neutron activation of different reactor-grade graphites, the formation of relative strong ^{35}S -radioactivities were observed. As the present investigation shows, their formation results from the nuclear reaction $^{35}\text{Cl}(n, p)^{35}\text{S}$ of the chlorine impurities present in most reactor

graphites from the chemical high temperature purification process using halogene containing compounds. An activation analysis technique was used to determine the chlorine content of different graphite specimens and also to estimate their sulphur impurities. The observations in connection with the volatilization of the formed sulphur-35 are presented.

graphites from the chemical high temperature purification process using halogene containing compounds. An activation analysis technique was used to determine the chlorine content of different graphite specimens and also to estimate their sulphur impurities. The observations in connection with the volatilization of the formed sulphur-35 are presented.

graphites from the chemical high temperature purification process using halogene containing compounds. An activation analysis technique was used to determine the chlorine content of different graphite specimens and also to estimate their sulphur impurities. The observations in connection with the volatilization of the formed sulphur-35 are presented.

EUR 3894 d

Assoziation

Europäische Atomgemeinschaft - EURATOM

Kernforschungsanlage Jülich des Landes

Nordrhein-Westfalen e.V. KFA

**BILDUNG VON SCHWEFEL-35
IN NEUTRONENBESTRAHLTEN
REAKTOR-GRAPHIT**

von

M. LASER, E. MERZ und H. J. RIEDEL

1968



THTR 51

Bericht abgefasst bei KFA

Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V. - Deutschland

Assoziation Nr. 003-63-1 RGAD

ZUSAMMENFASSUNG

Bei der Neutronenbestrahlung verschiedener Reaktorgraphit-Sorten wurde die Bildung relativ starker ^{35}S -Radioaktivitäten beobachtet. Wie die vorliegende Untersuchung zeigt, rührt deren Entstehung aus der Kernreaktion $^{35}\text{Cl}(n,p)^{35}\text{S}$ des in den meisten Reaktorgraphiten vom chemischen Hochtemperatur-Reinigungsprozeß mit halogenhaltigen Substanzen herrührenden Chlorspuren her. Auf aktivierungsanalytischem Wege wurden die Chlorgehalte verschiedener Graphitsorten bestimmt sowie deren Schwefelgehalte abgeschätzt. Die Beobachtungen zur Verflüchtigung des gebildeten Schwefel-35 werden mitgeteilt.

SCHLAGWORTE

GRAPHITE
NEUTRON BEAMS
NUCLEAR REACTIONS
CHLORINE 35
SULFUR 35
PROTONS

IMPURITIES
ACTIVATION ANALYSIS
DETERMINATION
CHLORINE
SULFUR
VOLATILITY

Bildung von Schwefel-35 in neutronenbestrahltem Reaktor-Graphit⁺

An die Reinheit des in gasgekühlten Hochtemperaturreaktoren verwendeten Graphits werden sehr hohe Anforderungen gestellt. Ein merklicher Gehalt an stark neutronenabsorbierenden Substanzen verschlechtert die Neutronenökonomie eines Reaktors erheblich; außerdem begünstigen Fremdstoffzusätze Korrosionsvorgänge am Graphit. Um die geforderten Reinheitsgrade zu erzielen, die einem Aschegehalt von ca. 50 - 300 ppm entsprechen, oder wie man die Güte des Graphits in der Reaktortechnik häufig ausdrückt, einen Neutronenquerschnitt von etwa 4 mb aufweist, bedarf es sorgfältiger Reinigungsprozesse. Als solche wendet man heute vorzugsweise Hochtemperatur-Halogenidverflüchtungsverfahren an.

In einem früheren Bericht haben wir unsere Analysenergebnisse über Spurenverunreinigungen in verschiedenen Reaktorgraphitsorten mitgeteilt. Bei weiteren Untersuchungen, insbesondere im Zusammenhang mit der radioaktiven Nachuntersuchung bestrahlter Graphitbrennelemente (1), stellten wir bei den verwendeten Graphitsorten das Vorhandensein einer zunächst unbekanntem Strahlungskomponenten fest. Sie zeichnet sich dadurch aus, daß sie sich beim Erhitzen des Graphits auf ca. 800°C größtenteils verflüchtigt und die emittierte radioaktive Strahlung ausschließlich sehr schwach energetischen β -Teilchen zuzuschreiben ist. Wie sich später herausstellte, handelt es sich dabei um das Radionuklid Schwefel-35, einem reinen β -Strahler ($E_{\beta} = 0,167$ MeV) mit einer Halbwertszeit von 87 Tagen.

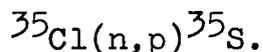
Wir haben dieser Beobachtung zunächst nicht allzuviel Bedeutung zugemessen. Im Hinblick darauf, daß die im Reaktor gebildeten ^{35}S -Aktivitäten jedoch recht erhebliche Werte annehmen können, die außerdem schon bei mäßig hohen Temperaturen in starkem Maße verflüchtigt werden, glauben wir, daß unsere Beobachtungen von einigem allgemeinen Interesse sein dürften. Die Tatsache, daß ^{35}S nur äußerst schwach energetische β -Strahlen, jedoch keine γ -Quanten emittiert, dürfte dafür verantwortlich sein, daß diese in Graphit-moderierten Reaktoren in zum Teil erheblichem Umfange entstehende Radioaktivität

⁽⁺⁾Manuskript erhalten am 8. Dezember 1968.

bisher wenig beachtet wurde. Sie kann vor allem in Hochtemperaturreaktoren freigesetzt werden. Sie gelangt entweder in den Gaskühlkreislauf und scheidet sich dann vermutlich in den Wärmeaustauschern oder Gebläsen ab, oder sie entweicht durch das Abluftsystem in die Atmosphäre.

Bildung von ^{35}S in Graphit durch Neutronenbestrahlung

Der für die Entstehung der im Reaktorgraphit beobachteten ^{35}S -Aktivität hauptsächlich verantwortliche Bildungsmechanismus ist die Kernreaktion



Der Wirkungsquerschnitt dieser Kernreaktion beträgt für thermische Neutronen 190 mb.

Die von verschiedenen Produzenten gelieferten Reaktorgraphit-Sorten enthalten offensichtlich von den zur chemischen Hochtemperatur-Reinigung verwendeten Halogenverbindungen noch erhebliche Spuren von Chlor bzw. Chlorverbindungen. Wir haben daher auf aktivierungsanalytischem Wege den Cl-Gehalt in verschiedenen Sorten ermittelt. Zur Durchführung der Analysen wurden jeweils Graphitproben von 200 mg in pulverisierter Form zusammen mit Cl-Standardproben 1 h lang im Reaktor FRJ-1 mit thermischen Neutronen bestrahlt ($\Phi = 2,6 \cdot 10^{11} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$). Das durch die Kernreaktion $^{37}\text{Cl}(n,\gamma)^{38}\text{Cl}$ mit einem Wirkungsquerschnitt von 560 mb sich bildende Radionuklid ^{38}Cl eignet sich vorzüglich zum aktivierungsanalytischen Nachweis des Chlors. Es zerfällt unter Aussendung von β - und γ -Strahlung mit einer Halbwertszeit von 37 Minuten.

Die Graphitproben wurden in einer geschlossenen Destillationsapparatur mit einem konz. HNO_3 -Oleum-Gemisch (8 : 18) gelöst und das während einer 1-stündigen Destillation ausgetriebene Chlor in 5%iger NaOH aufgefangen. Diese Lösung wurde dann mit HNO_3 angesäuert und durch Zugabe von 10 ml 0,1 n AgNO_3 -Lösung das Cl als AgCl ausgefällt, abfiltriert, getrocknet und zur γ -spektrometrischen Bestimmung des ^{38}Cl dessen 2,16 MeV- γ -Linie mit Hilfe eines 400-Kanal-Gammaspektrometers ausgezählt. Zur

Ermittlung der chemischen Ausbeute wurde das Filtrat mit 0,1 n Ammoniumrhodanid-Lösung zurücktitriert. In gleicher Weise wurde mit der NH_4Cl -Standardprobe verfahren. Die erzielten Ergebnisse sind in der folgenden Tabelle zusammengestellt:

Graphit-Sorte	Chlor-Verunreinigung in ppm	^{35}S -Sättigungsaktivität pro kg Graphit bei $\Phi_n = 10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ in Curie	Geschätzte Schwefel-Maximal-Verunreinigung in ppm
Union Carbide USA ATJ, normal	269	2,35	440
Union Carbide USA ATJ, reactor grade	48	0,42	50
Kropfmühl-Rings- dorff KR-67/A	117	1,02	10
Kropfmühl-Rings- dorff KR-67/B	320	2,80	5
Pechiney, Frank- reich PZ-71	320	2,80	20
Carbon Lorraine Frankreich 3780/WEG/PP	75	0,67	25
Carbon Lorraine Frankreich 2239/PP	212	1,84	30
Siemens-Plania VP155/64AMT	86	0,75	30

Die in der Tabelle aufgeführten Analysenwerte sind auf $\pm 3\%$ genau.

Tabelle 1: Chlor-Spurenverunreinigungen in verschiedenen Graphitsorten und ^{35}S -Sättigungsaktivitäten bei einem Neutronenfluß von $10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Schätzwerte für Schwefelverunreinigungen.

Aus diesen Daten und dem bekannten Wirkungsquerschnitt für die Reaktion $^{35}\text{Cl}(n,p)^{35}\text{S}$ läßt sich die auftretende ^{35}S -Aktivität leicht berechnen, wenn man den jeweils in einem Reaktor herrschenden Neutronenfluß kennt. Die Tabelle gibt in der zweiten Spalte Auskunft über die bei einem Neutronenfluß von $10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ entstehenden ^{35}S -Sättigungsaktivitäten.

Die Bildung von ^{35}S in Graphit kann neben der beschriebenen Produktion aus Chlorverunreinigungen noch durch thermischen Neutroneneinfang an Schwefelverunreinigungen gemäß der Kernreaktion $^{34}\text{S}(n,\gamma)^{35}\text{S}$ erfolgen ($\sigma_{n(\text{th})} = 260 \text{ mb}$). Gegenüber der Produktion durch eine (n,γ) -Reaktion an Chloratomen spielt dieser Mechanismus nur eine untergeordnete Rolle. Entsprechend dem bekannten Wirkungsquerschnitt und der prozentualen Häufigkeit des ^{34}S von nur 4,22 %, liefert die (n,γ) -Reaktion, - gleiche Spurengehalte des Graphits an Chlor und Schwefel vorausgesetzt, - nur etwa 1/15 der ^{35}S -Aktivität.

Über Schwefelverunreinigungen in verschiedenen Reaktorgraphitsorten sind uns nur wenig genaue Angaben bekannt. Anhand der von uns in länger bestrahlten Graphitproben gemessenen ^{32}P -Aktivitäten läßt sich unter Zugrundelegen bekannter Bestrahlungsdaten der maximale Schwefelgehalt in den verschiedenen Sorten abschätzen. Bei den Schätzungen wird davon ausgegangen, daß die gemessene ^{32}P -Aktivität ausschließlich über eine (n,p) -Reaktion am ^{32}S entstanden ist. Ein eventueller Beitrag aus der Reaktion $^{31}\text{P}(n,\gamma)^{32}\text{P}$ würde die angegebenen Schwefelgehalte entsprechend erniedrigen. Die Tabelle 1 gibt in der letzten Spalte eine Übersicht der geschätzten Maximalverunreinigungen an Schwefel. Wie man sieht, liegen sie fast alle wesentlich niedriger als die Chlorwerte, und daher fällt die Bildung von ^{35}S -Aktivitäten über die Reaktion $^{34}\text{S}(n,\gamma)^{35}\text{S}$ nicht ins Gewicht.

Beobachtungen zur Verflüchtigung der gebildeten ^{35}S -Aktivität

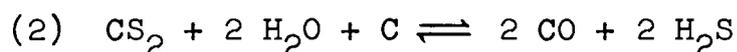
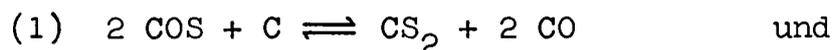
In verschiedenen Versuchsreihen wurde untersucht, inwieweit die gebildete ^{35}S -Aktivität durch Erhitzen verflüchtigt werden kann.

Die bestrahlten Graphitproben wurden in einer geschlossenen Apparatur 1 h lang bei 800°C ausgeheizt und das entweichende Gas mit Hilfe einer Töppler-Pumpe in ein Gaszählrohr vom Typ FZ/35P (Fa. Berthold) überführt. Als Zählgas diente ein Argon-Methangemisch (1 : 9) bei einem Gesamtdruck von 760 Torr. Die Messung der Proben erfolgte über einen Zeitraum von 200 Tagen. Der Abfall zeigte eine reine Komponente mit einer Halbwertszeit von 87 Tagen. Die Energie der β -Strahlung wurde durch die Aufnahme eines Fermi-Plot ermittelt und zu ca. 0,17 MeV gefunden.

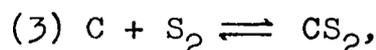
Außerdem wurde festgestellt, daß ein Ausheizen der Graphitproben im Vakuum bei 800°C vor der Neutronenbestrahlung die Bildung von ^{35}S erheblich verringert. Die nach einem 1-stündigen Ausheizen der Graphitproben gemessenen Werte betragen nur noch 15 - 20 % des ursprünglichen Gehaltes. Der Grund dafür liegt offensichtlich in einer weitgehenden Entfernung der vorhandenen Cl-Verunreinigung durch Verflüchtigung.

Der verflüchtigte ^{35}S muß in einer leicht flüchtigen und relativ stabilen chemischen Modifikation vorliegen, denn bei der Lagerung über längere Zeiträume im Gaszählrohr bei Zimmertemperatur zeigte sich keinerlei Abscheidung von ^{35}S im Zählrohr.

Als hauptsächliche Schwefelverbindungen können in Gegenwart von Graphit Schwefelkohlenstoff CS_2 , Carbonylsulfid COS und bei Anwesenheit von Feuchtigkeit Schwefelwasserstoff H_2S entstehen. Zwischen ihnen bestehen Gleichgewichte, die durch die Gleichungen



beschrieben werden können. Der Partialdruck von elementarem Schwefel S_2 , fixiert durch die Bildungsreaktion des Schwefelkohlenstoffs,



liegt im untersuchten Temperaturbereich um ca. 1 - 2 Zehnerpotenzen unter dem des CS_2 . SO_2 kann in merklichen Mengen nur durch eine Sekundärreaktion gebildet werden, wenn das Gas nicht mehr im Gleichgewicht mit Graphit steht. Die freie Enthalpie der Reaktion ist bei 1000°K (727°C) schwach positiv (Gleichgewichtskonstante $K_p = 0,95$), wird aber bei höheren Temperaturen negativ. Dementsprechend sind bei etwa äquivalenten Mengen an S und O größere Mengen an COS nur bei relativ niedrigen Temperaturen und unter der Bedingung, daß die Summe der Partialdrucke der am Gleichgewicht beteiligten Komponenten in der Nähe von 1 atm liegt, zu erwarten. Im Vakuum oder bei starker Verdünnung durch ein Inertgas, z.B. das Kühlgas im Reaktor, wird das Gleichgewicht zur rechten Seite hin verschoben. Bei einem starken Sauerstoffüberschuß (bezogen auf den Schwefelgehalt) tritt allerdings auch bei stärkerer Verdünnung COS in merklichen Mengen auf. So liegt z.B. bei einem Verhältnis $\text{S} : \text{O} = 1 : 500$ bei einem Gesamtpartialdruck der beteiligten Komponenten von 10^3 atm der Partialdruck des COS in der gleichen Größenordnung wie der des CS_2 . Bei höheren Temperaturen wird das Gleichgewicht immer stärker zur rechten Seite hin verschoben. In Gegenwart von Wasserdampf wird im gesamten interessierenden Temperaturbereich H_2S gebildet. Zur Identifizierung der verflüchtigten ^{35}S -haltigen Komponente wurden den aus reaktorbestrahltem Graphit in der bereits beschriebenen Weise ausgetriebenen Gasspuren jeweils etwa gleiche Mengen der oben erwähnten Gase zugesetzt und durch Reaktion mit $\text{Pb}(\text{OOCCH}_3)_2$ bzw. $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ versucht, die genannten Möglichkeiten weiter einzugrenzen. Die gebildeten Verbindungen von PbS bzw. SrSO_3 waren völlig inaktiv. Beim Versuch einer fraktionierten Kondensation einer weiteren Gasprobe (die nicht mit Trägergasen versetzt wurde) in Kühlfallen von -20°C und -80°C , blieb die erste Falle völlig, die zweite nahezu aktivitätsfrei. Der Hauptteil der insgesamt vorhandenen ^{35}S -Aktivität fand sich als nicht kondensierbar. Dieser Anteil wurde nun mit je 5 Vol.% des Zählrohrinhaltes an CS_2 , SO_2 und H_2S vermischt und das Gas wiederum durch die beiden Kühlfallen

von -20° und -80°C geschickt. Da bereits 1 Vol.-%-ige Zusätze an den genannten Gasen zum Zählgas ein Funktionieren der verwendeten Gaszählrohre infolge von Nachentladungen bzw. Durchzündungen völlig verhindern, das die letzte Kühlfalle passierende Gasgemisch jedoch ohne Störung wieder nahezu die gesamte Zählrate lieferte, darf angenommen werden, daß die ^{35}S -haltige Substanz weder als H_2S , CS_2 noch SO_2 vorlag, sondern vermutlich als COS .

In einer weiteren Versuchsreihe wurde geprüft, unter welchen Bedingungen sich das ^{35}S -haltige Gas an einem Aktivkohlefilter festhalten läßt. In zwei Aktivkohlefallen, von denen die erste auf -25°C und die zweite auf -80°C gekühlt wurden, fand sich der größte Teil der ^{35}S -Gesamtaktivität in der auf die tiefere Temperatur gekühlten Falle. Durch Ausheizen dieser Falle in einem siedenden Wasserbad ließ sich die Radioaktivität wieder weitgehend austreiben.

Für die tatkräftige Mitarbeit bei den experimentellen Untersuchungen danken wir Frl. M. Ferkinghoff und Herrn H. Lammertz recht herzlich.

Literatur:

- (1) H.J. Riedel, EURATOM-Report, EUR 3271,d (1967)

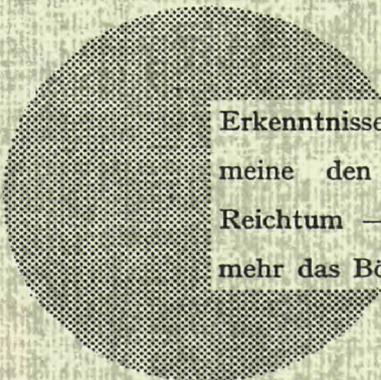
AN UNSERE LESER

Alle Euratom-Berichte werden nach Erscheinen in der von der Zentralstelle für Information und Dokumentation (CID) herausgegebenen Monatszeitschrift **EURATOM INFORMATION** angezeigt. Abonnements (1 Jahr : DM 60) und Probehefte sind erhältlich bei :

Handelsblatt GmbH
"Euratom Information"
Postfach 1102
D-4 Düsseldorf (Deutschland)

oder

Office central de vente des publications
des Communautés européennes
2, Place de Metz
Luxembourg



Erkenntnisse verbreiten ist soviel wie Wohlstand verbreiten — ich meine den allgemeinen Wohlstand, nicht den individuellen Reichtum — denn mit dem Wohlstand verschwindet mehr und mehr das Böse, das uns aus dunkler Zeit vererbt ist.

Alfred Nobel

VERTRIEBSSTELLEN

Alle Euratom-Berichte sind bei folgenden Stellen zu den auf der ersten Rückseite des Umschlags angegebenen Preisen erhältlich (bei schriftlicher Bestellung bitte die EUR-Nummer und den Titel, die beide auf der ersten Umschlagsseite jedes Bericht stehen, deutlich angeben).

OFFICE CENTRAL DE VENTE DES PUBLICATIONS DES COMMUNAUTES EUROPEENNES

2, place de Metz, Luxembourg (Compte chèque postal N° 191-90)

BELGIQUE — BELGIË

MONITEUR BELGE
40-42, rue de Louvain - Bruxelles
BELGISCH STAATSBLAD
Leuvenseweg 40-42, - Brussel

LUXEMBOURG

OFFICE CENTRAL DE VENTE
DES PUBLICATIONS DES
COMMUNAUTES EUROPEENNES
9, rue Goethe - Luxembourg

DEUTSCHLAND

BUNDESANZEIGER
Postfach - Köln 1

NEDERLAND

STAATSDRUKKERIJ
Christoffel Plantijnstraat - Den Haag

FRANCE

SERVICE DE VENTE EN FRANCE
DES PUBLICATIONS DES
COMMUNAUTES EUROPEENNES
26, rue Desaix - Paris 15^e

ITALIA

LIBRERIA DELLO STATO
Piazza G. Verdi, 10 - Roma

UNITED KINGDOM

H. M. STATIONERY OFFICE
P. O. Box 569 - London S.E.1

EURATOM — C.I.D.
51-53, rue Belliard
Bruxelles (Belgique)

CDNA03894DEC