

APR 26 1967

**EUR 3271.d**

**MASTER**

ASSOCIATION

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT — EURATOM  
BROWN BOVERI/KRUPP REAKTORBAU GmbH, DÜSSELDORF  
KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH DES LANDES  
NORDRHEIN-WESTFALEN e.V.

**RADIOCHEMISCHE BESTIMMUNG  
DER SPALTPRODUKTABGABE VON  
BESCHICHTETEN BRENNSTOFFPARTIKELN  
NACH DER REAKTOR-BESTRAHLUNG**

von

H. J. RIEDEL

RELEASED FOR ANNOUNCEMENT  
IN NUCLEAR SCIENCE ABSTRACTS

1967



**THTR 15**

Bericht abgefaßt bei der KFA  
Institut für Chemische Technologie  
Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V.,  
Jülich, Deutschland

Assoziation Nr. 003-63-1 RGAD

## **DISCLAIMER**

**This report was prepared as an account of work sponsored by an agency of the United States Government. Neither the United States Government nor any agency Thereof, nor any of their employees, makes any warranty, express or implied, or assumes any legal liability or responsibility for the accuracy, completeness, or usefulness of any information, apparatus, product, or process disclosed, or represents that its use would not infringe privately owned rights. Reference herein to any specific commercial product, process, or service by trade name, trademark, manufacturer, or otherwise does not necessarily constitute or imply its endorsement, recommendation, or favoring by the United States Government or any agency thereof. The views and opinions of authors expressed herein do not necessarily state or reflect those of the United States Government or any agency thereof.**

## **DISCLAIMER**

**Portions of this document may be illegible in electronic image products. Images are produced from the best available original document.**

## HINWEIS

Das vorliegende Dokument ist im Rahmen des Forschungsprogramms der Kommission der Europäischen Atomgemeinschaft (EURATOM) ausgearbeitet worden.

Es wird darauf hingewiesen, daß die Euratomkommission, 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 3.20

FF 4.—

FB 40

Lit. 500

Fl. 3.—

verkauft.

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

Gedruckt von Van Muysewinkel,  
Brüssel, Februar 1967

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

**EUR 3271.d**

ASSOCIATION

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT — EURATOM  
BROWN BOVERI/KRUPP REAKTORBAU GmbH, DÜSSELDORF  
KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH DES LANDES  
NORDRHEIN-WESTFALEN e.V.

**RADIOCHEMISCHE BESTIMMUNG  
DER SPALTPRODUKTABGABE VON  
BESCHICHTETEN BRENNSTOFFPARTIKELN  
NACH DER REAKTOR-BESTRAHLUNG**

von

**H. J. RIEDEL**

**1967**



**THTR 15**

Bericht abgefaßt bei der KFA  
Institut für Chemische Technologie  
Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V.,  
Jülich, Deutschland

Assoziation Nr. 003-63-1 RGAD

## Zusammenfassung

Eine wesentliche Frage bei der Verwendung von sog. „coated particles“ als Kernbrennstoffträger beim Betrieb von Hochtemperatur gasgekühlten Reaktoren ist die, in welchem Maße gasförmige und nichtgasförmige Spaltprodukte die Brennstoffumhüllung, das „Coating“, durchdringen. Die Schicht aus pyrolytischem Kohlenstoff kann eine Kontamination des Reaktorkühlkreislaufes durch die hochradioaktiven Spaltprodukte verhindern. Im Rahmen eines Nachuntersuchungsprogramms über das Verhalten verschiedener Partikeltypen in Abhängigkeit der Betriebstemperatur, dem Abbrand etc., untersuchten wir radiochemisch die Spaltproduktverteilung in dem die „coated particles“ umgebenden Graphit.

Für die analytische Trennung und Bestimmung der Spaltelemente bedienen wir uns der Destillation, der Fällung, der Flüssigkeitsextraktion und der Ionenaustauschtechnik. Die Methoden werden kurz beschrieben. Auf diese Weise können 12 Spalt nuklide bestimmt werden. Eine auffällig hohe Beweglichkeit wurde für die Spaltelemente Ba, Sr und Y beobachtet. Die Abgabe von anderen Spaltprodukten mit hoher Spaltausbeute liegt wesentlich tiefer.

Einige die Spaltproduktabgabe beeinflussenden Parameter werden diskutiert.

Radiochemische Bestimmung der Spaltproduktabgabe von beschichteten Brennstoffpartikeln nach der Reaktor-Bestrahlung (\*)

Ähnlich wie für den in Großbritannien betriebenen gasgekühlten Hochtemperatur-Dragon-Reaktor sollen auch in dem bei Jülich errichteten Kugelhaufen-Reaktor beschichtete  $UC_2$ - oder  $UO_2$ -Partikeln als Kernbrennstoffträger verwendet werden. Diese sogenannten "Coated Particles" werden in Graphitkugeln von 6 cm Durchmesser gefüllt und stellen die kontinuierlich im Reaktor-Core durchsetzbaren Brennelemente dar. Eine für den Betrieb eines solchen Reaktors wichtige Frage ist nun, in welchem Maße Uranspaltprodukte diese aus Pyrokohlenstoff bestehende Umhüllung des Brennstoffpartikels durchdringen und somit den Primärkühlkreislauf kontaminieren können.

Experimentelles:

Zur Verfügung standen zwei Bestrahlungsexperimente:

Experiment 1: Hier befanden sich 2 g Coated Particles (Typ:WM 35) mit 140 mg  $^{235}U$  und 730 mg  $^{232}Th$  in Form ihrer Karbide in dem Ringspalt einer Graphitbüchse angeordnet. Der mittlere Neutronenfluß während der 490,5 h dauernden Reaktorbestrahlung betrug  $10^{14} n \cdot cm^{-2} \cdot sec^{-1}$ , der Uranabbrand 9,5 - 10 %. Die Temperatur während der Bestrahlung war im Kern des Graphitbehälters 1100 - 1200°C, in der Graphithülse 800 - 900°C. Die (U,Th) $C_2$ -Partikeln waren mit pyrolytischem Kohlenstoff umschichtet, mittlere Schichtdicke = 145  $\mu$  (1).

Im Experiment 2 wurden zwei verschiedene Typen Coated Particles in unterschiedlicher Anordnung in drei Graphitbüchsen bestrahlt. In der Büchse A befanden sich Partikeln vom Typ WM 54 mit insgesamt 433 mg  $^{235}U$ . Die Büchse B enthielt Partikeln des Typs WM 54 mit insgesamt 431 mg  $^{235}U$ , und die Bestrahlungsbüchse C schließlich enthielt wieder Brennstoffpartikeln des Typs WM 35 mit

(\*) Manuskript erhalten am 29 November 1966.

386 mg  $^{235}\text{U}$ . Alle Partikeln waren mit Pyrokohlenstoff umschichtet, wobei die WM 54-Partikeln eine mittlere Schichtdicke von  $125\ \mu$  besaßen. Die Bestrahlungsdauer betrug für alle 3 Graphitbüchsen 436,5 Stunden (2).

Weitere Angaben sind in der Tabelle 1 aufgeführt.

Tabelle 1

Loop	Neutronenfluß $\text{n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{sec}^{-1}$	Abbrand		Temperatur $^{\circ}\text{C}$		Geometrie der Partikelunter- bringung
		% fifa	% fima	Anfang	Ende	
A	$0,78 \cdot 10^{14}$	9,3	1,5	1315	1130	Tapeten- variante
B	$0,745 \cdot 10^{14}$	6,9	1,1	1260	1100	Ringspalt
C	$1,07 \cdot 10^{14}$	10,0	1,6	1335	1050	Ringspalt

Nach dem Bestrahlungsende wurden die mit Thermoelementen bestückten und mit Heliumgaskühlung versehenen Bestrahlungsvorrichtungen in heißen Zellen demontiert und die die Brennstoffpartikeln beherbergenden Graphitbüchsen entnommen. Aus diesen wurden mit speziellen Abdrehmethoden einzelne Graphitproben genommen, wobei peinlichst darauf geachtet wurde, daß von Probenahme zu Probenahme keine Kontamination auftreten konnte. Diese, ca. 500 mg Graphit betragenden Proben, wurden in kleine Plastikdosen gefüllt und dann radiochemisch auf die wesentlichsten Uran-Spaltprodukte untersucht. Leider konnten die Spaltproduktbestimmungen erst relativ lange nach dem Bestrahlungsende durchgeführt werden, so daß weniger langlebige Nuklide wie  $^{131}\text{J}$  überhaupt nicht mehr und andere, wie z.B.  $^{141}\text{Ce}$ , nur noch schlecht nachgewiesen werden konnten. Insgesamt wurden von uns 9 Radionuklide quantitativ bestimmt,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{95}\text{Zr} + \text{Nb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{91}\text{Y}$ ,  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{140}\text{Ba}$ .

Neben diesen wichtigsten Spaltnukliden befanden sich in den zu untersuchenden Proben noch ( $n, \gamma$ )-aktivierte Spurenelemente aus dem Reaktorgraphit wie Tb, Sc, Cr, Fe und eine stärkere  $^{60}\text{Co}$ -Kontamination, die aber nicht quantitativ ausgewertet wurden.

#### Radiochemische Bestimmung der Spaltproduktaktivitäten:

Die Graphitprobe lösten wir zunächst in einem Gemisch aus Salpetersäure und Oleum. Aus einem aliquoten Teil davon wurde das Ruthenium nach Zusatz von  $\text{CrO}_3$  und Verdünnung auf das doppelte Volumen abdestilliert und bestimmt. Für die weitere Auftrennung wurde ein Aliquot der Stammlösung 12 n HCl-sauer gemacht, über eine Dowex 2 x 8 Anionenaustauschersäule gegeben, an der das  $^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$  adsorbiert und nach Elution von dieser bestimmt wird. Alle anderen Nuklide befanden sich im Effluent, das, nachdem 0,1 n HCl-sauer gemacht, über eine Dowex 50 x 8 Kationenaustauschersäule gegeben wurde. Die auf dieser Säule adsorbierten Elemente Cs, Y + SE, Sr und Ba eluierten wir dann nacheinander mit  $\alpha$ -Oxi-Isobuttersäure steigender Molarität und steigendem  $\text{p}_\text{H}$ -Wert. Aus den einzelnen Eluaten wurden nach Trägerzugabe Cs, Sr und Ba ausgefällt und die Radioaktivitäten gemessen. Aus dem das Yttrium und die Seltenen Erden enthaltenden Eluat wurde nach Trägerzugabe mit Methylisobutylketon das Ce extrahiert (3). Nach Fällung und Bestimmung der chemischen Ausbeute wurde in diesen zwei Präparaten die Radioaktivität des  $^{91}\text{Y}$  und  $^{144}\text{Ce}$  gemessen. Eine Reinheitskontrolle der ausgefallenen Radionuklide erfolgte durch  $\gamma$ -Spektrometrie.

Diese kurz skizzierte Ionenaustauschermethode ermöglicht die exakte Bestimmung von 12 Spaltelemtenten; auch die Seltenen Erden können durch eine zusätzliche Kationenaustauschertrennung einzeln bestimmt werden.

Für eine Vielzahl von zu untersuchenden Proben ist sie aber zu zeitaufwendig. Hier genügt schon oft die Bestimmung einer kleineren Anzahl von Spaltnukliden wie  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{140}\text{Ba}$ ,  $^{89}\text{Sr}$  und  $^{144}\text{Ce}$ , wobei gezielte Fällungsmethoden schneller durchführbar sind. So benutzten wir zur Kontrolle der Ionenaustauschertrennung

direkte Fällungen aus der Spaltproduktlösung. Für Cs die Fällung mit Hexakieselwolframsäure aus HCl-Gas gesättigter konz. HCl-Lösung (4), für Ba-Sr die bekannte Methode der Nitratfällung und Trennung aus essigsaurer Lösung (5) und für Ce die Extraktion mit Methylisobutylketon (6).

### Ergebnisse und Diskussion:

Die ermittelten Radioaktivitäten der einzelnen Spaltnuklide in  $\mu\text{Ci}/100 \text{ mg Graphit}$  sind für jede untersuchte Probe der zwei Experimente in den Abbildungen 1 und 2 aufgezeichnet. Diese Werte repräsentieren die Aktivitätsverteilung im Radialschnitt durch die Graphit-Bestrahlungsbehälter.

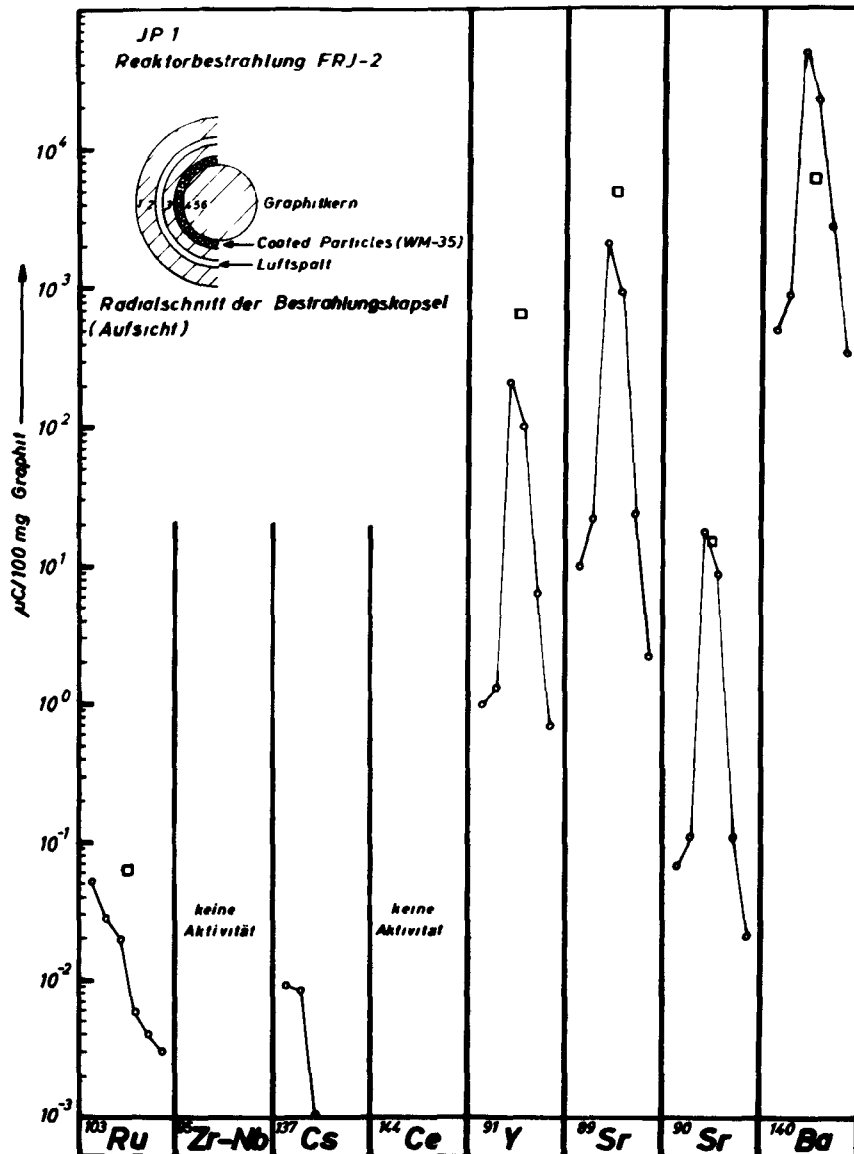


Abb. 1: Verteilung der Spaltnuklide in Experiment 1

Die Abbildung 1 enthält links oben die Draufsicht eines Radialschnittes, der aus Reaktorgraphit bestehenden Bestrahlungskapsel von Experiment 1 mit den Positionsangaben der Probenahme. Deutlich sichtbar wird, daß die Radionuklide  $^{140}\text{Ba}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{89}\text{Sr}$  und  $^{91}\text{Y}$  am stärksten das Coating durchdrungen haben, die hohen  $^{91}\text{Y}$ -Werte können dabei durch Diffusion seines 9,7 h  $^{91}\text{Sr}$ -Vorläufers bedingt sein. Die bei den Elementen Ru, Y, Sr und Ba aufgetragenen Einzelpunkte zwischen den Positionen 3 und 4 zeigen die Aktivitäten der Spaltnuklide eines zwischen den Coated Particles steckenden Graphitstäbchens. An diesem Stäbchen waren nach der Bestrahlung deutlich sichtbare Korrosionskrater aufgetreten, die bereits in der Autoradiographie einen stärkeren Schwärzungsgrad verursachten und nach der Analyse, wie aus der Abbildung 1 hervorgeht, einen beachtlichen Anstieg der spezifischen Aktivitäten für  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{91}\text{Y}$  und  $^{89}\text{Sr}$  aufwiesen.

Die Abbildung 2 bringt links oben wieder einen Schnitt durch die bei Experiment 2 verwendeten zwei Typen von Bestrahlungsbüchsen und zeigt die Positionen der Probenahme. Die Höhe der Radioaktivitäten und das Profil ihrer Verteilung stimmt in Loop A, B und C im wesentlichen untereinander und auch mit dem in Abbildung 1 gezeigten Experiment 1 überein. Die Kurvenverläufe geben für die Nuklide  $^{91}\text{Y}$ ,  $^{89} + ^{90}\text{Sr}$  und  $^{140}\text{Ba}$  die höchsten spezifischen Aktivitäten in der Position 4 resp. 5 an, der den Coated Particles unmittelbar benachbarten Zone also.

Berücksichtigt man den hohen Fehler der experimentellen Werte und eine nicht immer auszuschließende Kontaminierung bei der Probenahme, so weist  $^{144}\text{Ce}$  eine annähernd gleiche Verteilung auf die 5 Positionen auf,  $^{137}\text{Cs}$  eine leichte und  $^{103}\text{Ru}$  eine stark nach dem kälteren Teil (Position 1) zunehmende spezifische Aktivität.

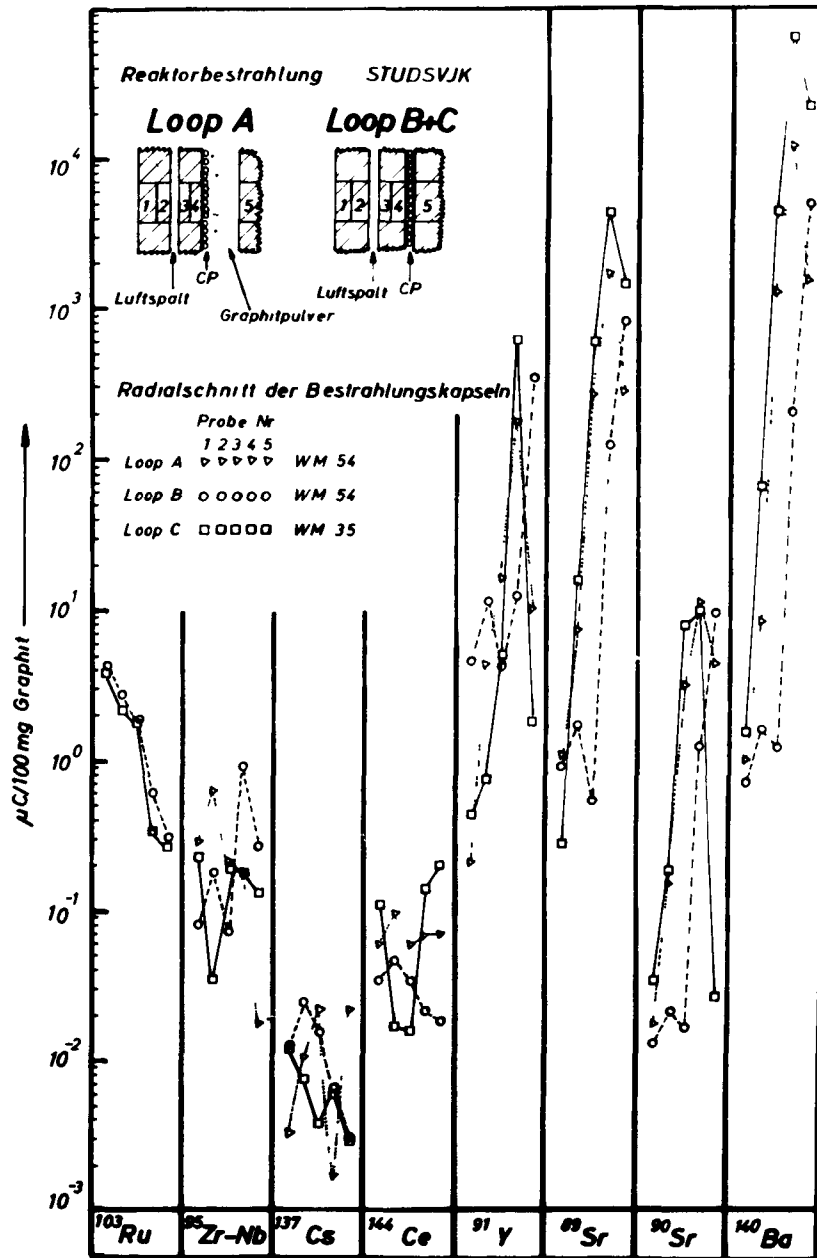


Abb. 2: Verteilung der Spaltnuklide in Experiment 2

Das in Experiment 1 überhaupt nicht nachweisbare  $^{95}\text{Zr-Nb}$ , das im allgemeinen als Indikator für  $^{235}\text{Uran}$  angesehen wird, da Zr in  $\text{UC}_2$  und Graphit kaum diffundiert, ZrC einen äußerst niedrigen Dampfdruck besitzt und in Urancarbid löslich ist, war in Experiment 2 in bestimmbar, aber stark schwankenden Mengen vorhanden. Schließt man sich der Meinung an, daß Zr am Ort der Entstehung verbleibt, so muß der hier für die Bestrahlungskapseln verwendete Graphit Uran-Spurenverunreinigungen besessen haben.

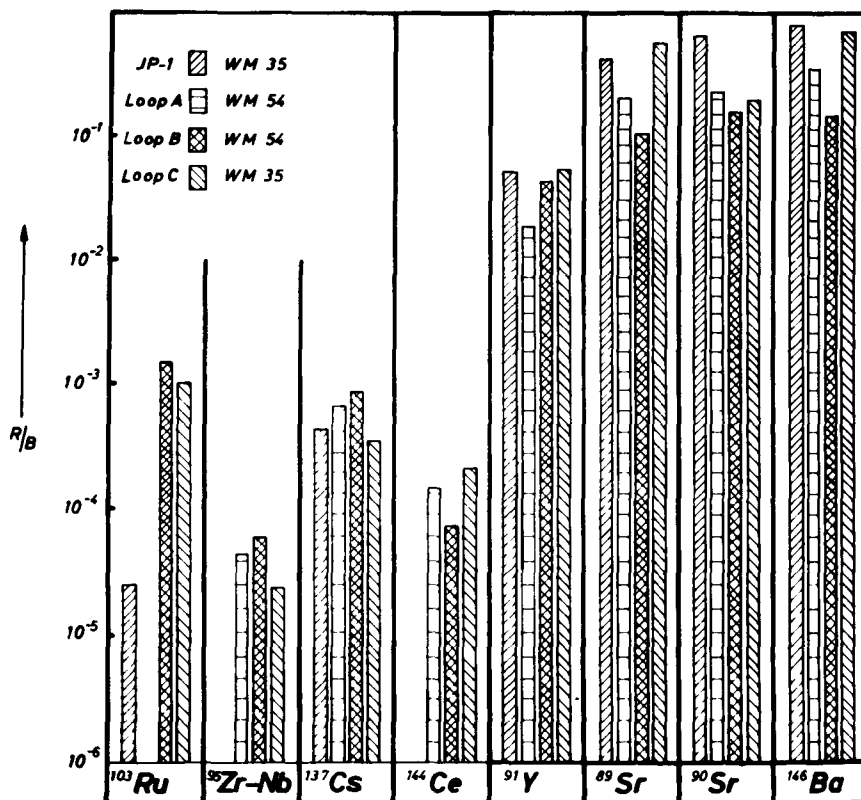


Abb. 3: Vergleichende Übersicht der Spaltproduktabgabe

In der Abbildung 3 haben wir die R/B-Werte aufgetragen, das ist das Verhältnis der freigesetzten zur gebildeten Radioaktivität des entsprechenden Nuklids. Da hierbei die gesamte Graphitmenge eingeht, zeigt dieses Bild am realistischsten

die durch das Pyrokohlenstoff-Coating erfolgte Spaltprodukt-abgabe. Ba und Sr durchdringen nahezu vollständig,  $^{91}\text{Y}$ , sicher bedingt durch seinen Sr-Vorläufer, in hohem Maße das Coating. Die R/B-Werte für Ce, Cs, Zr und Ru liegen um Größenordnungen tiefer. Besonders für  $^{137}\text{Cs}$  wurde bei Arbeiten im Rahmen des Dragon-Projektes aber eine starke Abgabe gefunden (7). Das legt die Vermutung nahe, daß in unserem Falle  $^{137}\text{Cs}$  teilweise aus dem Graphitbehälter abgedampft ist und so bei den Bestimmungen nicht erfaßt wurde.  $^{103}\text{Ru}$  scheint entsprechend der anwesenden Sauerstoffmenge als  $\text{RuO}_4$  über eine Gasphasendiffusion gewandert zu sein, obwohl  $\text{RuO}_4$  neben Graphit thermodynamisch nicht stabil ist. Der Transportmechanismus für Ruthenium in Graphit ist zur Zeit aber noch völlig ungeklärt. Cs mit seinem großen Ionenradius sowie Sr und Ba können auch als Verbindungen mit anderen Spaltprodukten oder als Carbide mit dem Kernbrennstoff  $\text{UC}_2$  keine Mischkristalle bilden. Sie werden besonders bei hohen Temperaturen ausgetrieben.

Für den Massentransport können drei Mechanismen diskutiert werden: 1. die Gitterdiffusion, 2. die Korngrenzendiffusion und 3. die Gasdiffusion. Von zahlreichen Autoren werden zu diesem Komplex unterschiedliche Ansichten vertreten. Die vorliegende Arbeit will sich aber nicht unmittelbar mit der Klärung dieser Frage beschäftigen. Auf Grund unserer Ergebnisse läßt sich ein Einfluß der Ionenradien bei  $\text{Sr}^{2+}$  (1,12 Å),  $\text{Ba}^{2+}$  (1,34 Å),  $\text{Cs}^+$  (1,67 Å) erkennen; es wird aber auch eine Überlappung durch die Gasdiffusion deutlich, die den Materietransport über den Luftspalt in den Bestrahlungsbüchsen verursacht haben dürfte. Bei  $1500^\circ\text{K}$  haben Cs, Sr und Ba z.B. einen so großen Dampfdruck über ihren Carbiden resp. Graphitverbindungen (für Cs), daß selbst in dem porösen Graphit der Bestrahlungskapsel der Massentransport über die Gasphase von der heißen zur kälteren Zone neben der Festkörperdiffusion erfolgen kann (8).

Daß die Art des Coatings für die Spaltproduktabgabe von Einfluß ist, zeigen Versuche, bei denen zusätzlich mit Siliciumcarbid gecoaed wurde, was ein etwas günstigeres Rückhaltevermögen für metallische Spaltprodukte bewirkte (7). Aber auch Unterschiede in der Pyrokohlenstoffumhüllung, wie in der vorliegenden Arbeit zwischen WM 35- und WM 54-Partikeln, machen sich bereits bemerkbar. Die Umhüllung der WM 35-Partikeln besteht aus 3 Schichten: 37  $\mu$  gefügelosem, 46  $\mu$  laminarem plus weiteren 68  $\mu$  laminarem Pyrokohlenstoff, während die der WM-54-Partikeln aus 32  $\mu$  gefügelosem und 96  $\mu$  fest-columnarem Pyrokohlenstoff besteht.

Die Spaltproduktabgabe in Experiment 1 (JP 1) und Experiment 2, Loop C - die WM 35-Partikeln enthalten - (schräg gestrichelte Balken) ist im wesentlichen vergleichbar und ebenso die zwischen Loop A und B, mit jeweils WM 54-Partikeln. Die geometrische Anordnung der Partikeln in der Graphitbüchse scheint von untergeordnetem Einfluß zu sein. Der Uranabbrand und die erreichte Temperatur dürften die Spaltproduktabgabe aber direkt beeinflussen.

Nach der vorliegenden Untersuchung und solchen an anderen Stellen über die Abgabe auch von Spalt-Edelgasen zeigen Pyrokohlenstoffumhüllungen außer für Ba, Sr, Cs, Y, Te und J ein gutes Rückhaltevermögen mit R/B-Werten von  $10^{-7}$  -  $10^{-4}$ . Beobachtete  $^{233}\text{Pa}$ -Aktivitäten können durch Wanderung des Protactiniums selbst oder des  $^{232}\text{Th}$  der Partikeln mit anschließendem Neutroneneinfang und  $\beta$ -Zerfall im Graphit aufgetreten sein. Bei Reaktorgraphituntersuchungen fanden wir durch Aktivierungsanalyse aber auch, daß dieser 0,05 - 0,35 ppm  $^{232}\text{Th}$  als Verunreinigung enthalten kann und somit die  $^{233}\text{Pa}$ -Aktivität verursacht (9).

Die maximale Temperatur der Brennstoffbehälter in den hier untersuchten Experimenten lag bei  $1300^{\circ}\text{C}$ . Wieweit höhere Temperaturen, bis ca.  $2000^{\circ}\text{C}$  z.B., das bisherige Bild verschieben, muß in weiteren Versuchen geklärt werden.

Literatur:

- 1) KFA-interner Bericht;  
Bestrahlung JP-1
- 2) BBK-Reaktorbau GmbH;  
Akttenotiz vom 20.10.1965, Vers. Nr. 8.06  
Bestrahlungen in Studsvik
- 3) L. Wish und E.C. Freiling:  
Report USNRDL-464 (1960)
- 4) E.K. Heyde:  
J. Amer. Chem. Soc. 74, 4181 (1952)
- 5) O. Hahn, F. Strassmann u. W. Seelmann-Eggebert:  
Z. Naturforsch. 1, 545 (1946)
- 6) L.E. Glendenin, K.F. Flynn, R.F. Buchanan u.  
E.P. Steinberg:  
Anal. Chem. 27, 59 (1955)
- 7) P.E. Brown, J. Dosudil, E. Groos u. H.J. de Nordwall:  
AERE-R 4607
- 8) M. Laser u. H. Kirchner:  
THTR-Report, im Druck
- 9) E. Merz u. H.J. Riedel:  
THTR-Report, im Druck

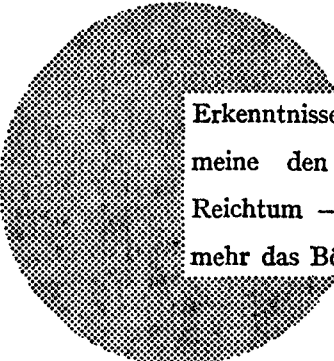
**AN UNSERE LESER**

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

#### DEUTSCHLAND

BUNDESANZEIGER  
Postfach - Köln 1

#### FRANCE

SERVICE DE VENTE EN FRANCE  
DES PUBLICATIONS DES  
COMMUNAUTES EUROPEENNES  
26, rue Desaix - Paris 15<sup>e</sup>

#### ITALIA

LIBRERIA DELLO STATO  
Piazza G. Verdi, 10 - Roma

#### LUXEMBOURG

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

#### NEDERLAND

STAATSDRUKKERIJ  
Christoffel Plantijnstraat - Den Haag

#### UNITED KINGDOM

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

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