



MEMORIA DESCRIPTIVA

que se presenta para unir a la solicitud

de

PATENTE DE INVENCION
formulada el 18 de Noviembre de 1.966, con el nº 333.515
en

E S P A Ñ A

por VEINTE años

a nombre de COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE, entidad francesa,
establecida en 29, rue de la Fédération, París, Francia, por:

"PROCEDIMIENTO DE PREPARACION DE HIDRAZINA ANHIDRA"

=====

El presente invento, de Albert Gaussens, se refiere a los procedimientos de preparación de hidracina o hidrazina, y más particularmente a los procedimientos de preparación directa de hidracina anhidra por radiolisis del amoníaco.

5 Los procedimientos clásicos de fabricación de la hidracina consisten en concentrar el líquido de Raschig obtenido por adición de una solución concentrada de amoniaco en una solución de hipoclorito de sodio. Esta concentración se efectúa según dos métodos.

10 El primero consiste en destilar en tres etapas el licor



de Raschig purificado para obtener una solución a 80% de hidracina. La tercera etapa de destilación es muy peligrosa por que, en contacto con el aire, la mezcla destilada pasa a ser explosiva. La solución de hidracina a 80% obtenida es tratada luego
5 por agentes deshidratantes para conducir a una solución muy concentrada o a la hidracina anhidra.

El segundo método consiste en extraer químicamente la hidracina en forma de derivados minerales u orgánicos que son luego sometidos a varios tratamientos que conducen a soluciones
10 de hidracina muy concentradas o a la hidracina anhidra.

Estos procedimientos de preparación de la hidracina presentan numerosos inconvenientes: en particular, aparte del gran número de operaciones que suponen y el peligro de explosión, exigen instalaciones de tratamientos complejas y la utilización de productos muy costosos.
15

Para librarse de estos inconvenientes, se ha propuesto preparar la hidracina anhidra directamente por radiólisis del amoníaco líquido en ausencia de toda traza de humedad y destilación bajo vacío de la mezcla obtenida.

20 Sin embargo, la radiólisis del amoníaco conduce a rendimientos en hidracina muy pequeños que perjudican considerablemente la rentabilidad de estos procedimientos.

El presente invento permite, por el contrario, aumentar muy ampliamente el rendimiento de la radiólisis, gracias a la
25 utilización de interceptores de átomos de hidrógeno y/o de electrones libres, es decir, de compuestos susceptibles de captar preferentemente los átomos de hidrógeno o los electrones libres. Estos últimos tienen generalmente forma de electrones amoniados, es decir, enjaulados dentro de un grupo de moléculas de amoníaco.
30



Los inventores han comprobado en particular que se podían obtener rendimientos de radiólisis por lo menos dobles con relación a los rendimientos de los procedimientos anteriores, efectuando la irradiación de amoníaco en presencia de acetona.

5 Se puede suponer que la acetona actúa como interceptor de átomos de hidrógeno o de electrones libres, aunque el mecanismo de su intervención no esté explicado de manera cierta.

La proporción de acetona en el amoníaco está comprendida ventajosamente entre 0,01 y 2 moles/l.

10 Una característica secundaria del invento concierne a condiciones de irradiación aplicadas. Resulta de experiencias de radiólisis del amoníaco, efectuadas con o sin interceptor, que han permitido definir intensidades de irradiación y dosis preferentes cuyos valores están muy alejados de las gamas juzgadas
15 más interesantes hasta ahora. Por ejemplo, la radiólisis del amoníaco se realiza generalmente en los procedimientos conocidos con intensidades de irradiación del orden de algunos centenares de miles de rads por hora; se estimaba, por el contrario, inútil recurrir a intensidades superiores a un megarrad por
20 hora. Las experiencias efectuadas han mostrado, por el contrario, que existía un óptimo de intensidad muy superior a este valor, que permitía obtener rendimientos de radiólisis G superior a 1, y del orden de 2, en presencia de interceptores. El rendimiento G se define como el número de moléculas transformadas o
25 de radicales libres formados para una energía de 100 electrones-voltios efectivamente absorbidos por el producto irradiado.

Según esta característica secundaria, la irradiación se efectúa con una intensidad comprendida entre 10 y 80 Mrad/h y de preferencia de 25 a 50 Mrad/h. La dosis de irradiación es
30 de preferencia superior a 100.000 Mrads y está comprendida es-

230



pecialmente entre 100.000 y 600.000 Mrads.

Según todavía otra característica del invento, la irradiación del amoníaco se realiza en presencia de por lo menos un interceptor de átomos de hidrógeno, estando comprendida entonces
5 la proporción de acetona en el amoníaco entre 0,1 y 2 moles/l, y de preferencia entre 0,3 y 1 mol/l. Como interceptores de átomos de hidrógeno se pueden utilizar especialmente el ter-butanol, el trifenil-metano o el cloroformo.

A título de ejemplo, el cloroformo se añade al amoníaco en
10 proporciones comprendidas entre 0,01 mol y 5 moles/l, y de preferencia de 0,1 mol/l. La radiólisis del amoníaco líquido que contiene simultáneamente acetona y cloroformo en estas proporciones, permite alcanzar rendimientos G por lo menos del orden de
1, incluso para intensidades de irradiación alejadas de las gamas preferentes definidas más arriba. Estos rendimientos son
15 ampliamente superiores a los valores alcanzados por los procedimientos conocidos anteriormente.

El presente invento propone igualmente una instalación que permite la puesta en práctica del procedimiento, instalación que
20 se caracteriza por que incluye medios de introducción de amoníaco con adición de interceptores en un bucle cerrado que comprende medios de circulación del amoníaco entre un cilindro de irradiación provisto de medios de caldeo, y un depósito provisto de
medios de separación de los gases de radiólisis, medios de extracción del amoníaco irradiado en dicho bucle y medios de separación de la hidracina obtenida.
25

Se indican a continuación ejemplos de puesta en práctica del procedimiento según el invento. Los resultados consignados en las tablas siguientes y en las figuras 1 y 2 ponen de manifiesto la mejora de rendimiento obtenida. Se describirá luego
30



un modo de realización particular de la instalación de puesta en práctica del procedimiento haciendo referencia a la figura 3 que ilustra esquemáticamente la instalación descrita.

Para efectuar la irradiación del amoníaco con vistas a la producción de hidracina, se puede recurrir a radiaciones electromagnéticas y corpusculares y especialmente a los electrones o a los rayos X o gamma.

La irradiación del amoníaco se realiza en ausencia de cualesquiera trazas de aire y de humedad y a este efecto, el procedimiento incluye de preferencia una etapa previa de desgasificación bajo vacío del amoníaco líquido que contiene los interceptores elegidos.

La irradiación se efectúa ventajosamente a una temperatura superior a la temperatura normal, permaneciendo a la vez, sin embargo, inferior a 90°C. En efecto, se ha observado que el rendimiento G de la radiólisis aumenta cuando la temperatura, y por consiguiente la tensión de vapor de amoníaco, aumentan a condición, sin embargo, de no rebasar un límite del orden de 90°C más allá del cual el rendimiento G disminuye muy rápidamente.

La separación de la hidracina producida por la radiólisis del amoníaco puede efectuarse por cualesquiera medios conocidos, y especialmente por congelación de los interceptores y luego destilación del amoníaco, permaneciendo la hidracina en fase líquida.

En la tabla I adjunta, se han indicado rendimientos de radiólisis del amoníaco obtenidos por irradiación de amoníaco líquido anhidro del comercio. Este, después de la adición de interceptores, fué refrigerado a menos de 96°C y desgasificado bajo vacío de 10^{-4} torr. Después del cierre estanco de la pro-



beta, la mezcla fué irradiada recurriendo a la irradiación gamma del cobalto 60.

En los ejemplos consignados en esta tabla, la irradiación tuvo lugar siempre a una temperatura de 21°C y la intensidad de irradiación fué del orden de un megarrad por hora. Esta tabla pone ya de manifiesto la mejora del rendimiento obtenida con relación a la irradiación clásica en las mismas condiciones (primer ejemplo), cuando se opera en presencia de acetona, y sobre todo en presencia de acetona y de un interceptor de átomos H: terbutanol, alcohol isopropílico o, de preferencia, cloroformo.

Los ejemplos de irradiación consignados en la tabla II, utilizan intensidades del mismo orden, pero muestran la progresión del rendimiento cuando la temperatura aumenta de 21 a 86°C.

Las tablas III, IV y V, dan ejemplos en los cuales la irradiación del amoníaco fué efectuada por medio de un haz de electrones pulsados: se utilizó un acelerador que proporcionó electrones de 4 MeV (con una amplitud de espectro de 0,5 MeV) en forma de impulsos de 2 microsegundos, con una frecuencia de repetición de 375 hertz.

El empleo de electrones pulsados parece constituir una solución particularmente interesante, por que es relativamente poco onerosa, dadas las intensidades de irradiación preferentes del orden de 40 Mrad. Además, se ha comprobado que permite obtener buenos rendimientos en hidracina. Otra solución ventajosa consiste en recurrir a las radiaciones gamma producidas en los reactores nucleares.

Las tablas III, IV y V, ponen de manifiesto la incidencia de la intensidad de irradiación y de la dosis sobre el rendimiento



to en hidracina, cualquiera que sea la mezcla interceptora utilizada, incluso en ausencia de interceptores. Indican los rendimientos de la radiólisis G obtenidos por irradiación de amoníaco por un haz de electrones pulsados con diferentes intensidades y diferentes dosis de irradiación. En los experimentos consignados en la tabla III, el amoníaco fué irradiado solo, sin interceptor. Por el contrario, la tabla IV concierne a la irradiación de amoníaco que contiene un mol/l de acetona y 0,1 mol/l de cloroformo y la tabla V la de amoníaco que contiene diferentes proporciones de acetona, con adición en ciertos casos de un interceptor de átomos H distinto del cloroformo.

Ya se utilicen o no interceptores para favorecer la formación de la hidracina, se pone de manifiesto que los rendimientos más elevados corresponden a intensidades de irradiación del orden de 40 Mrad/h. Estos rendimientos son del orden de 1 en ausencia de interceptores. Son netamente superiores cuando la irradiación se efectúa en presencia de la mezcla interceptora acetona-cloroformo, y alcanzan 2,24 para una dosis de irradiación del orden de 400.000 rads.

La figura 1 pone claramente de manifiesto el óptimo de intensidad de irradiación. Representa las variaciones del rendimiento G en hidracina, llevado a las ordenadas, en función de la intensidad de la irradiación, llevada a las abscisas en megarrads por hora. La curva A se refiere a la irradiación del amoníaco puro. La curva B se refiere a la irradiación de amoníaco que contiene un mol/l de acetona y 0,1 mol/l de cloroformo. En todos los casos, la dosis de irradiación es de 400.000 rads.

Resalta de esta figura que la irradiación del amoníaco, en presencia de una mezcla interceptora, permite alcanzar ren-



2301
dimientos G netamente superiores a 2, cuando la intensidad de irradiación es igual a un valor óptimo próximo a 40 Mrad/h.

La figura 2 muestra la influencia de la dosis de irradiación. Aquí todavía la irradiación del amoníaco se efectúa por medio de un haz de electrones pulsados. El amoníaco recibe la adición de la misma mezcla interceptora que más arriba. Las curvas C,D,E,F representan las variaciones del rendimiento G en hidracina en función de la dosis de irradiación expresada en megarrads por hora, para valores crecientes de la intensidad de la irradiación, respectivamente del orden de 10,40,80 y 110 Mrad/h.

La curva D, que corresponde al óptimo de intensidad, se sitúa en los valores más elevados del rendimiento G. En todas las curvas, el rendimiento presenta un máximo para un valor de la dosis de irradiación del orden de 0,4 Mrad.

Se describirá ahora un modo de realización particular de la instalación según la presente solicitud que permite realizar la irradiación del amoníaco en continuo con vistas a la producción de hidracina anhidra.

La instalación descrita está representada esquemáticamente en la figura 3. Comprende tres partes principales:

- Una primera parte 10, reservada a la purificación del amoníaco y a la introducción de los interceptores,
- una segunda parte 20, constituida por un circuito de irradiación en forma de bucle cerrado,
- una tercera parte 30, que comprende el equipo necesario para la separación de los interceptores, para la extracción y para el almacenaje de la hidracina producida.

El amoníaco líquido del comercio es purificado en primer lugar en 11 sobre sodio con el fin de eliminar sus principales



impurezas, a saber el agua, el oxígeno, y el gas carbónico. El amoníaco destilado es recogido por un compresor 12 y licuado. El amoníaco purificado es almacenado en forma líquida en el depósito 13. Es tomado periódicamente para ser enviado a un mezclador 14 en el cual se efectúa la adición de los interceptores en 15.

La mezcla obtenida es enviada periódicamente al bucle de irradiación 20. Naturalmente, la introducción del amoníaco en este bucle podría efectuarse igualmente en continuo.

El bucle de irradiación 20 incluye un cilindro de irradiación 21 dispuesto en el haz de electrones proporcionado por un acelerador 22. El cilindro 21 incluye una resistencia de caldeo 23 que permite llevar la mezcla irradiada a una temperatura fijada a un valor de 86°C por ejemplo. El bucle incluye, por otra parte, un depósito 24 en el cual los gases formados en el curso de la radiólisis, hidrógeno y nitrógeno esencialmente, son separados del amoníaco y eliminados.

Una bomba 25 permite hacer circular en continuo el amoníaco con adición de interceptores entre el cilindro de irradiación 21 y el depósito 24, en circuito cerrado. Esta misma bomba 25 es utilizada igualmente para tomar el amoníaco en el mezclador 14 y para enviarlo hacia la tercera parte 30 cuando el amoníaco es pasado bajo el haz de electrones un número de veces suficiente, determinado por la dosis de irradiación a la cual se le desea someter.

Por lo demás, el volumen del cilindro 21 y el tiempo de permanencia del amoníaco en este cilindro a cada pasada son determinados en función de la intensidad de irradiación deseada, próxima al óptimo de 40 Mrad/h, y de la potencia de la fuente de electrones disponibles.

Como variante, la irradiación puede efectuarse, por ejemplo,



por medio de los rayos γ producidos en los reactores nucleares, estando colocado entonces el cilindro 21 en el núcleo de un reactor o en su proximidad.

5 Cuando la irradiación ha terminado, la bomba 25 impulsa el amoníaco irradiado hacia los cambiadores en serie 31 y 32, que permiten refrigerar el amoníaco hasta una temperatura del orden de -78°C , temperatura a la cual los interceptores utilizados cristalizan. Los interceptores son decantados y separados en el decantador 33.

10 La mezcla de amoníaco líquido y de hidracina es enviada luego a dos columnas en serie 34 y 35, en las cuales se efectúa bajo presión la destilación del amoníaco. Para mejorar la rentabilidad del procedimiento, las calorías necesarias son aportadas por agua calentada por cambio con el amoníaco irradiado en el cambiador 31. Las columnas de destilación son calentadas a 32°C . A esta temperatura, la tensión de vapor del amoníaco es de aproximadamente $12,6 \text{ kg/cm}^2$, mientras que la tensión de vapor de la hidracina es de $0,28 \text{ kg/cm}^2$. Estos valores están suficientemente alejados uno de otro para permitir
15 la separación completa de los dos constituyentes.

La hidracina líquida anhidra se obtiene en el fondo de la columna de destilación 35 y es enviada hacia un depósito 36 en el cual es almacenada bajo una atmósfera de nitrógeno deshidratado.

25 El amoníaco destilado en la cabeza de las columnas 34 y 35, bajo una presión de 6 kg/cm^2 en el caso particular descrito, es reciclado. A este efecto, es recogido por el compresor 12 que incluye pasos intermedios de refrigeración y que envía el amoníaco licuado a los depósitos de almacenaje 13.



TABLA I

Peso NH_3 g	Interceptor(es)	Concentra- ción mol/l	Intensidad Mrad/h	Dosis 10^{-3} rad	N_2H_4 10^{-3} mg	G
3,1210	sin	sin	1,700	248	5,5	0,21
3,2497	acetona	0,0503	1,615	215	9,8	0,42
3,3325	acetona	0,418	1,615	215	12,2	0,51
3,2089	<u>Ter</u> -butanol	2,0	1,615	215	14,4	0,62
	acetona	0,6				
3,2425	<u>Ter</u> -butanol	2,0	1,615	215	15,2	0,66
	acetona	1,30				
3,2530	alcohol iso- propílico	1,90	1,615	215	12,1	0,52
	acetona	0,6				
3,2029	alcohol iso- propílico	1,90	1,615	215	12,2	0,53
	acetona	1,2				
3,2520	cloroformo	0,25	1,615	215	28,75	1,23
	acetona	1,3				
3,5010	cloroformo	0,1	1,552	155	25,4	1,40
	acetona	1,2				
3,1979	cloroformo	0,09	1,43	214	35	1,54
	acetona	0,51				

TABLA II



Peso NH_3 g	Interceptor(es)	Concen- tración mol/l	Intensidad Mrad/h	Dosis 10^3 rad	N_2H_4 10^{-3} mg	G
3,3505	Cloroformo	0,1	0,968	210	22,2	0,95
	acetona	1,3				
3,8145	Cloroformo	0,1	0,740	233	36,5	1,23
	acetona	1,3				
3,4898	Cloroformo	0,1	0,740	233	37,8	1,40
	acetona	1,3				

TABLA III

Radiólisis del amoníaco
- sin interceptor -



Peso NH ₃ g	Intensidad Mrads/h	Dosis rads	N ₂ H ₄ 10 ⁻³ mg	G
3,3040	9 ± 2	99 000	6,7	0,61
4,4400	9 ± 2	210 000	19	0,61
3,6355	9 ± 2	460 000	33,4	0,60
3,3510	9 ± 2	910 000	45,7	0,45
2,7605	38 ± 3	88 000	8,1	1,00
3,4829	38 ± 3	272 000	31,2	1,00
3,3293	38 ± 3	324 000	46	1,00
3,2510	38 ± 3	600 000	54,6	0,84
3,4220	38 ± 3	1 000 000	63,8	0,56
3,2300	70 ± 4	63 500	5,80	0,85
3,7400	70 ± 4	209 000	21,0	0,81
3,3030	70 ± 4	274 000	24,0	0,79
3,4100	70 ± 4	505 000	42,5	0,74
3,3560	70 ± 4	950 000	56,5	0,53
3,5640	110 ± 5	155 000	12,8	0,69
3,3940	110 ± 5	280 000	25,8	0,70
3,4110	110 ± 5	702 000	48,5	0,61



TABLA IV

Radiólisis del amoniaco

Interceptor:

Acetona : 1 mol/l

Cloroformo : 0,1 mol/l

Peso NH_3 g	Intensidad Mrad/h	Dosis rads	N_2H_4 10^{-3} g	G
3,4820	10 \pm 2	181 000	31,0	1,37
3,2460	10 \pm 2	207 500	31,2	1,44
3,3473	10 \pm 2	400 000	66,0	1,48
3,1092	10 \pm 2	480 000	74,5	1,50
3,3510	10 \pm 2	710 000	106,-	1,34
3,4570	10 \pm 2	980 000	110,-	0,95
3,1128	40 \pm 3	259 000	75	2,20
3,0890	40 \pm 3	392 000	90	2,24
3,3810	40 \pm 3	625 000	153	1,92
3,2915	40 \pm 3	1 000 000	110	1,00
3,5115	80 \pm 4	178 000	26,1	1,30
3,1495	80 \pm 4	382 000	52,5	1,32
3,4100	80 \pm 4	640 000	89	1,22
3,2510	80 \pm 4	920 000	92	0,90
3,4620	110 \pm 5	132 000	12,5	0,83
3,4170	110 \pm 5	328 000	30,5	0,83
3,1510	110 \pm 5	575 000	48,5	0,80
3,2310	110 \pm 5	950 000	63	0,60

TABLA V



Peso NH ₃	Interceptores	Concen- tración mol/l	Inten- sidad Mrad/h	Dosis 10 ⁻³ rad	N ₂ H ₄ 10 ⁻³ mg	G (N ₂ H ₄)
3,7234	Acetona	0,16	45	500	47	0,76
3,3750	acetona	0,48	40	450	55	1,09
3,3845	acetona	0,97	40	450	62	1,23
3,3533	acetona	0,72	33	360	37	0,92
3,3739	acetona	0,98	33	360	42	1,04
3,3143	Trifenilmetano	2,1 10 ⁻²	20	220	30	1,24
	acetona	0,99				
3,1288	trifenilmetano	2,4 10 ⁻²	22	190	25	1,27
	acetona	1,05				
3,2843	trifenilmetano	1,50 10 ⁻²	20	190	27	1,30
	acetona	1,00				
3,4277	Ter-butanol	0,95	20	220	29	1,15
	acetona	0,98				
3,4886	ter-butanol	0,38	27	300	45	1,29
	acetona	0,95				
3,3764	ter-butanol	0,14	29	320	48	1,33
	acetona	0,98				
3,2236	Alcohol iso- propílico	1,07	33	360	47	1,22
	acetona	1,10				
3,4330	alcohol iso- propílico	0,55	33	360	46	1,12
	acetona	0,98				



Esta solicitud que corresponde a la presentada en Francia, el día 19 de Noviembre de 1.965, bajo el Nº PV 39.146, y el día 7 de Octubre de 1.966, bajo el Nº PV 79.240, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

- N O T A -

10 Los puntos de invención propia y nueva que se presentan para que sean objeto de esta solicitud de Patente de Invención en España, por VEINTE años, son los siguientes:

15 1.- Procedimiento de preparación de hidrazina anhidra que incluye la irradiación de amoníaco líquido en presencia de interceptores y la separación de la hidrazina formada por radiólisis.

2.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado por que la irradiación se efectúa en presencia de acetona, en proporción comprendida entre 0,01 y 2 mol/litro.

20 3.- Procedimiento según las reivindicaciones 1 ó 2, caracterizado por que la irradiación se efectúa con una intensidad comprendida entre 10 y 80 Mrad/h, y de preferencia de 25 a 50 Mrad/h.

25 4.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado por que la dosis de irradiación es superior a 100.000 rad y de preferencia está comprendida entre 100.000 y 600.000 rad.

30 5.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado por que la irradiación se efectúa en presencia de 0,1 a 2 mol/l, y de preferencia de 0,3 a 1 mol/l de acetona y de por lo menos un interceptor de átomos de hidrógeno, tal como el terbu-



tanol, el trifenilmetano, el cloroformo.

6.- Procedimiento según la reivindicación 5, caracterizado por que dicho interceptor de átomos H es el cloroformo, en proporción comprendida entre 0,01 y 5 mol/l, y de preferencia del orden de 0,1 mol/l con relación al amoníaco.

7.- Procedimiento según una cualquiera de las reivindicaciones precedentes, caracterizado por que la irradiación se efectúa por medio de un haz de electrones pulsados.

8.- Procedimiento según una cualquiera de las reivindicaciones precedentes, caracterizado por que la irradiación se efectúa por medio de los rayos gamma producidos en un reactor nuclear.

9.- Procedimiento según una cualquiera de las reivindicaciones 2, 5 ó 6, caracterizado por que la separación de la hidrazina formada incluye la congelación y la separación de la acetona, y eventualmente de los interceptores de átomos H, y luego la destilación del amoníaco, de preferencia bajo presión.

10.- Instalación para la puesta en práctica del procedimiento según una cualquiera de las reivindicaciones precedentes, caracterizada por que incluye medios de introducción de amoníaco con adición de interceptores en un bucle cerrado que comprende medios de circulación del amoníaco entre un cilindro de irradiación, especialmente por rayos X o gamma o electrones pulsados y provisto de medios de caldeo, y un depósito provisto de medios de separación de los gases de radiólisis, medios de extracción del amoníaco irradiado en dicho bucle, un cambiador de refrigeración de la mezcla irradiada a una temperatura suficientemente pequeña para provocar la congelación de los interceptores, medios de decantación y de separación de dichos



interceptores, por lo menos una columna de destilación del amoníaco, y medios de extracción de la hidrazina obtenida en el fondo de la columna.

11.- Procedimiento de preparación de hidrazina anhidra.

5 Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede, (representado en los dibujos que se acompañan) y con los fines que se han especificado.

Esta Memoria consta de diez y ocho hojas escritas a máquina por una sola cara.

Madrid, 23 de Julio 1931

P.A.

Alberto de Euzkadi

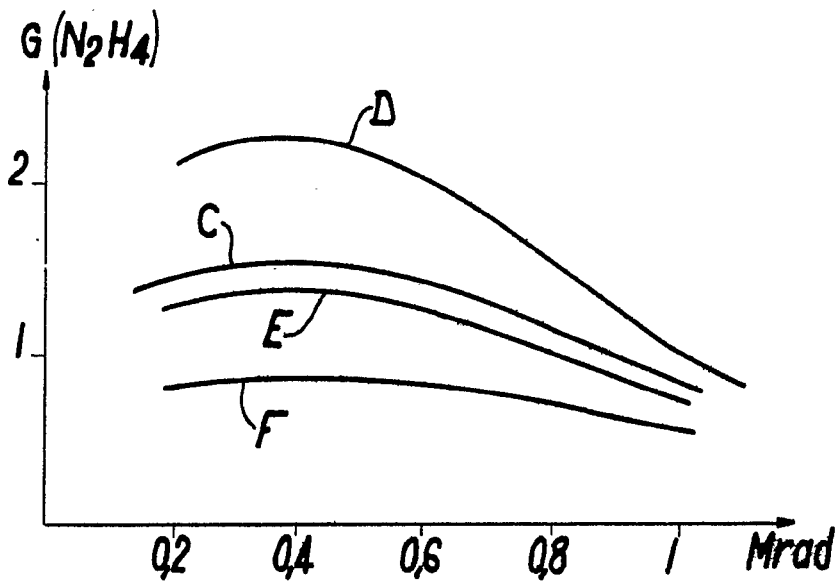
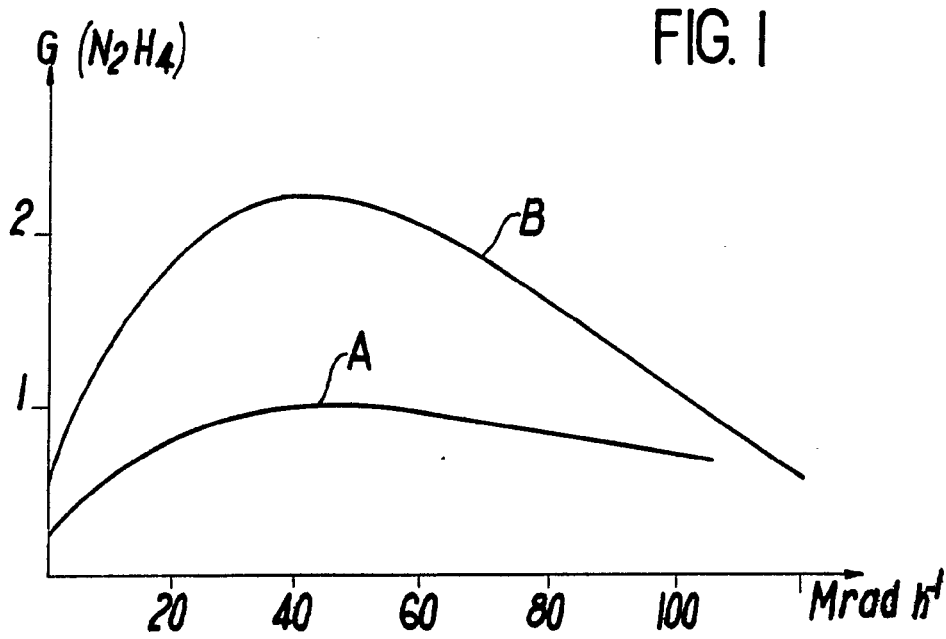
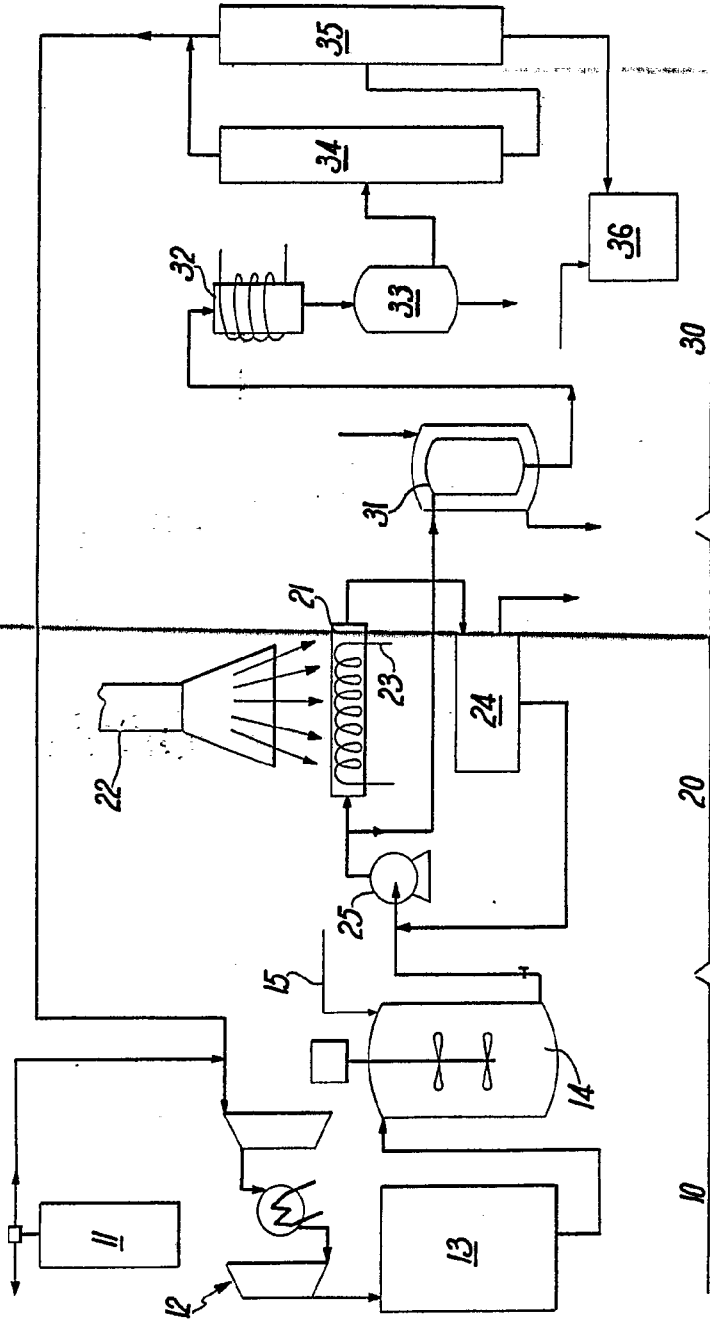


FIG. 2

Antea



FIG. 3



Whe

FIG. 3

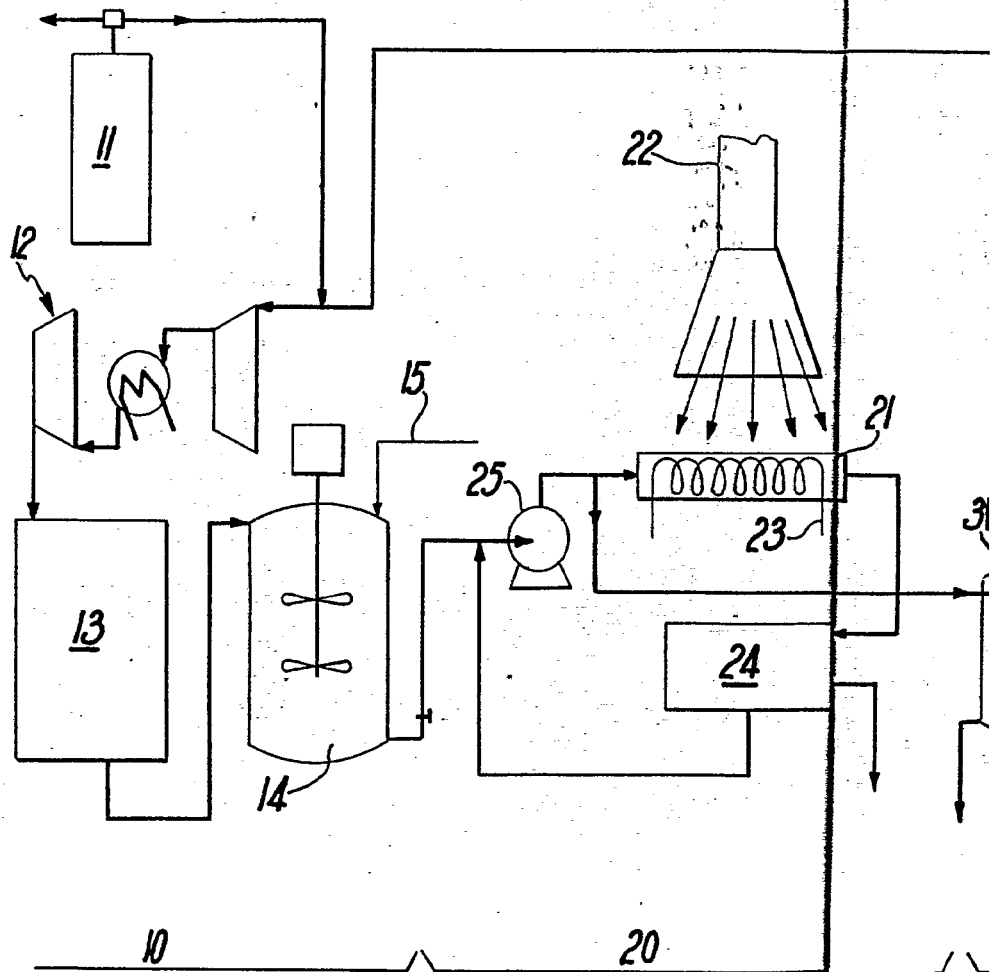
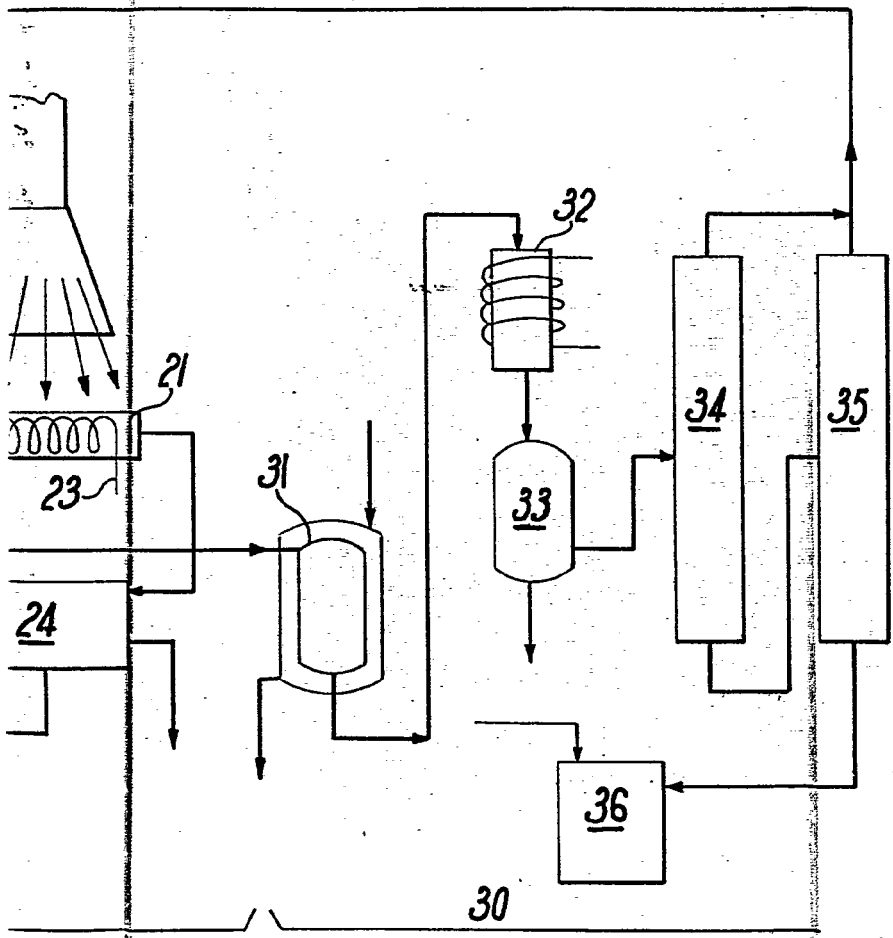




FIG. 3



Arto