

(19)



Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets



(11)

EP 1 674 152 A2

(12)

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(43) Veröffentlichungstag:
28.06.2006 Patentblatt 2006/26

(51) Int Cl.:
B01F 13/00 (2006.01) B01F 5/04 (2006.01)

(21) Anmeldenummer: **05027040.4**

(22) Anmeldetag: **10.12.2005**

(84) Benannte Vertragsstaaten:
**AT BE BG CH CY CZ DE DK EE ES FI FR GB GR
HU IE IS IT LI LT LU LV MC NL PL PT RO SE SI
SK TR**
Benannte Erstreckungsstaaten:
AL BA HR MK YU

(30) Priorität: **23.12.2004 DE 102004062074**

(71) Anmelder: **Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
76133 Karlsruhe (DE)**

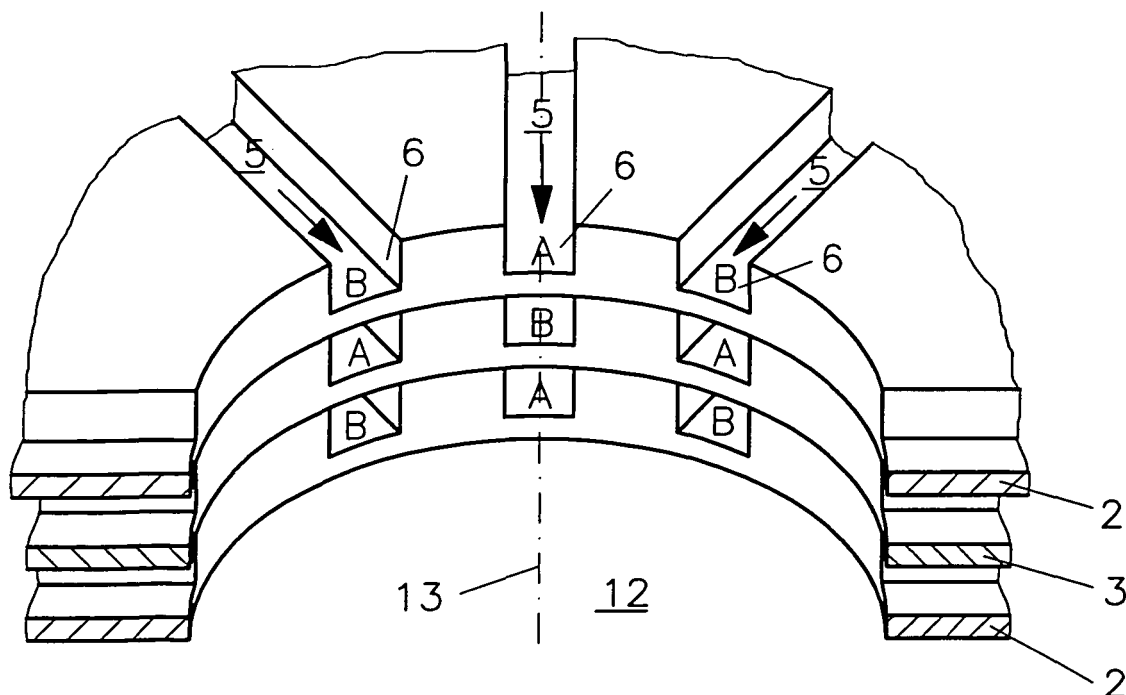
(72) Erfinder:
• **Schubert, Klaus, Dr.
76227 Karlsruhe (DE)**
• **Brandner, Jürgen, Dr.
69207 Samdhausen (DE)**
• **Kraut, Manfred
76351 Linkenheim-Hochstetten (DE)**
• **Wenka, Achim
75196 Remchingen (DE)**

(54) **Statischer Mikrovermischer**

(57) Statischer Mikrovermischer umfassend eine Mischkammer (12), Zuführungen (5) für mindestens zwei zu mischende oder zu dispergierende Fluidfraktionen mit je mindestens einer Einmündung (6) in die Mischkammer sowie mindestens eine Ausmündung aus der Mischkammer. Aufgabe ist es, einen statischen Mikrovermischer

mit einer verbesserten Vermischungseffizienz vorzuschlagen. Die Aufgabe wird dadurch gelöst, dass die Einmündungen der Fluidfraktionen in abwechselnder Reihenfolge in mindestens zwei Ebenen angeordnet sind, wobei die Einmündungen einer Ebene zu denen in der jeweils benachbarte Ebene versetzt angeordnet sind.

Fig. 4



EP 1 674 152 A2

Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft einen statischen Mikrovermischer mit einer Mischkammer, Zuführungen für mindestens zwei zu mischende oder zu dispergierende Fluidfraktionen mit je mindestens einer Einmündung in die Mischkammer sowie mindestens eine Ausmündung aus der Mischkammer gemäß Oberbegriff von Anspruch 1.

[0002] Im einem Mikrovermischer werden die zu mischenden Fluide - jedes getrennt für sich - in eine große Anzahl (oftmals mehrere Tausend) von Fluidstromfäden aufgeteilt, die alle gemeinsam über die Zuführungen geführt über die Einmündungen in eine Mischkammer münden. Durch die so erreichte, eng benachbarte Anordnung der einzelnen Mikrostromfäden der beiden oder mehreren Fluidfraktionen wird auf kurzem Weg und in sehr kurzer Zeit eine effektive Vermischung erzielt. Ein statischer Mikrovermischer kennzeichnet sich dadurch, dass in diesem außer den zu vermischenden Fluidfraktionen keine bewegten Teile vorgesehen sind.

[0003] Aus der DE 44 16 343 C2 ist ein derartiger Mikrovermischer mit wenigstens einer Mischkammer und einem vorgeschalteten Führungsbauteil für die getrennte Zufuhr von zu mischenden Fluiden zu einer Mischkammer bekannt, wobei das Führungsbauteil mit Ausdehnungen im Millimeterbereich aus mehreren, übereinander geschichteten Folien mit einer jeweiligen Dicke von ca. 100 μm Dicke zusammengesetzt ist, in die die Kanäle als Mikrostrukturen eingearbeitet sind. Die Kanäle einer Folie umfassen Zuführungen für nur eine der beiden Fluidfraktionen.

[0004] Ein ähnlicher Mikrovermischer, bei dem bei sonst gleichem Aufbau und Funktionsprinzip die Zuführungskanäle von für zwei zu mischenden oder zu dispergierenden Fluiden bogenförmig verlaufend parallel zueinander in die Mischkammer ausmünden, wird in DE 195 40 292 C1 beschrieben. Durch diese Anordnung verspricht man sich eine über den gesamten Ausströmquerschnitt gleichmäßig hohe und schnelle Vermischung in der Mischkammer. Die Führungskanäle haben einen gleich bleibenden Querschnitt mit Breiten kleiner 250 μm , die Folien, in denen die Kanalstrukturen eingearbeitet werden, eine Dicke von ca. 100 μm .

[0005] Eine weitere Möglichkeit, den Mischprozess zu optimieren, beschreibt WO97/17130. Durch eine Zusammenlegung von Einzelkanälen zu einem schlitzförmigen Kanal pro Folie erhält der Mikrovermischer durch den Wegfall der Stege zwischen den Einzelkanälen ein günstigeres Verhältnis von Volumenstrom zu Kanalwandfläche und damit eine Reduktion der Reibungsdruckverluste im Führungsbauteil.

[0006] Davon ausgehend besteht die Aufgabe der Erfindung darin, einen statischen Mikrovermischer der gattungsgemäßen Bauart mit einer verbesserten Vermischungseffizienz vorzuschlagen.

[0007] Diese Aufgabe wird durch die kennzeichnenden Merkmale in Anspruch 1 gelöst; die hierauf bezoge-

nen Unteransprüche beinhalten vorteilhafte Ausführungsformen dieser Lösung.

[0008] Die Erfindung umfasst eine Mischkammer, eine Anzahl von Zuführungen für mindestens zwei zu mischende oder zu dispergierende Fluidfraktionen mit je mindestens einer Einmündung in die Mischkammer sowie mindestens eine Ausmündung aus der Mischkammer. Die Wandung der Mischkammer im Bereich der Einmündungen ist beliebig gestaltbar, vorzugsweise aber eben oder als Zylinderfläche.

[0009] Das wesentliche Merkmal der Erfindung betrifft dabei die Anordnung der Einmündungen der Fluidfraktionen in die Mischkammer, und zwar in abwechselnder Reihenfolge in mindestens zwei Ebenen, wobei die Einmündungen einer Ebene zu denen in der jeweils benachbarten Ebene versetzt angeordnet sind. Eine abwechselnde Reihenfolge der Einmündungen und damit der in die Mischkammer einströmenden Fluidstromfäden stellt hohe spezifische Vermischungsflächen zwischen den zu mischenden oder dispergierenden Fluidfraktionen in der Mischkammer sicher. Dies lässt sich dadurch noch verbessern, dass die Einmündungen in mehreren, d.h. mindestens zwei Ebenen angeordnet sind, wobei die Einmündungen einer Ebene zu denen in der jeweils benachbarten Ebene versetzt angeordnet sind.

[0010] Sind die Einmündungen einer Ebene zu denen in der jeweils benachbarten Ebene um jeweils eine Einmündung versetzt angeordnet, erhält man eine Einbettung der in die Mischkammer einströmenden Fluidstromfäden in jeweils eine oder mehrere andere Fluidfraktionen. Idealerweise grenzt jeder der Fluidstromfäden vollständig, d.h. an allen Seiten an Fluidstromfäden einer anderen Fluidfraktion, womit eine größtmögliche spezifische Vermischungsfläche zwischen den Fluidfraktionen und in Folge dessen eine weitere Verbesserung der Vermischungseffizienz erzielbar ist. Bei der Vermischung oder Dispergierung von zwei Fluidfraktionen entsteht idealerweise eine Anordnung der einzelnen Einmündungsquerschnitte ähnlich einer Schachbrettanordnung.

[0011] Die Ausrichtung der Einmündungen zur Mischkammerwandung, d.h. der Einstrahlungswinkel der Fluidstromfäden erfolgt zwischen 0° (parallel zur Mischkammerwandung) und 90° (orthogonal zu der Mischkammerwandung) vorzugsweise zugunsten einer laminaren Strömung parallel zueinander in Richtung des oder der Auslässe. Turbulente Strömungsanteile fördern zwar eine Durchmischung oder Dispergierung der Fluidstromfäden in der Mischkammer, verursachen allerdings auch größere, bei bestimmten, insbesondere reaktiven Vermischungsvorgängen unbedingt zu vermeidenden Verweilzeitunterschiede der Fluidmischungen in der Mischkammer.

[0012] Konstruktiv wird die Aufgabe dadurch gelöst, dass die Ebenen durch gestapelte Folien mit Rillen als Fluidführungen gebildet sind, wobei die Zuführungen pro Fluidfraktion über Fluidkanäle, umfassend übereinander liegende Durchbrüche in den Folien, fluidisch miteinander

der verbunden sind. Die übereinander liegenden Durchbrüche bilden im Folienstapel die Fluidkanäle, von denen sich die Fluidführungen zur Mischkammer abzweigen. Die Fluidanschlüsse an die Fluidkanäle sind vorzugsweise auf der jeweils begrenzenden äußeren Deckfolie aufgesetzt. Alternativ ist eine Zuführung auch über Kanäle auf einer oder mehreren Folien realisierbar, wobei vorzugsweise die jeweils begrenzenden äußeren Deckfolien dichtend die Fluidkanäle abdecken.

[0013] Der vorgenannte geringe Steigungswinkel der Einmündungen erzielt man beispielsweise durch eine Gestaltung der Folien ganz oder nur im Bereich der Einmündungen, d.h. unmittelbar in an der Wandung der Mischkammer als Kegelstumpfmantelflächen oder als angewinkelte, abgebogene oder abgeknickte Folien. Dies ist beispielsweise über eine Kaltumformung der Einzelfolien oder des Folienstapels vor der Verbindung der Folien untereinander zum Führungsbauteil z.B. über ein Diffusionsschweißen realisierbar.

[0014] Es bietet sich ferner an, die Fluidkanäle mit entsprechenden Mitteln für Messungen wie z.B. einem Thermoelement oder für eine Temperierung oder eine Druckmessung wie z.B. mit einem Heizelement oder einem fluidischen Wärmtauscher auszustatten und entsprechend zu dimensionieren, wodurch sich die die Fluidfraktionen in vorteilhafter Weise unmittelbar vor Eintritt in die Fluidführungen individuell konfektionieren lassen.

[0015] Die Erfindung sowie Details dieser werden beispielhaft anhand von Ausführungsformen und folgenden Figuren näher erläutert. Es zeigen

Fig. 1a und b zwei Teildarstellungen einer ersten Ausführungsform mit ebener Wandung der Mischkammer im Bereich der Einmündungen,

Fig.2 die Aufsichten mehrerer Folien der ersten Ausführungsform,

Fig.3 die Ansicht einer zweiten Ausführungsform mit zylinderförmiger Mischkammer,

Fig.4 eine perspektivische Detailansicht der Einmündungen in die Mischkammer mit zylindrischer Wandung der zweiten Ausführungsform,

Fig.5 die Aufsichten mehrerer Folien der zweiten Ausführungsform,

Fig.6 eine Schnittdarstellung einer dritten Ausführungsform mit einem Ringspaltvolumen als Mischkammer,

Fig.7 eine perspektivische Detailschnittansicht eines Mischkammerabschnitts mit einer fluidischen Temperierungsvorrichtung sowie

Fig.8 eine perspektivische Schnittdarstellung einer Temperierungsvorrichtung für ein Ringspaltvolumen

gemäß der dritten Ausführungsform.

[0016] Die erste Ausführungsform weist eine ebene Wandung der Mischkammer im Bereich der Einmündungen auf. Fig. 1a und b zeigen beispielhaft einen Teil dieser Ausführungsform für die Vermischung von zwei Fluidfraktionen A und B, und zwar das Führungsbauteil 1, umfassend eine Vielzahl von aufeinander gas- und druckdicht miteinander verbundener (z.B. über einen Diffusionsschweißprozess), abwechselnd gestapelter Folien 2 und 3 (erste Folie 2 und zweite Folie 3) zwischen zwei Deckfolien 4. Auf den Folien 2 und 3 sind die Zuführungen 5 und die Einmündungen 6 als Kanalstrukturen eingearbeitet (vorzugsweise spangebend, e-rosiv oder chemisch ätzend). Die Deckfolien weisen Anschlussöffnungen 7 für die vorgenannten, in Fig.1a und b aber nicht weiter dargestellte Fluidanschlüsse auf. Die Anschlussöffnungen schließen sich im Führungsbauteil an die vorgenannten Fluidkanäle an, welche sich durch eine Anzahl übereinander deckungsgleich angeordneter Durchbrüche 8 in den Folien im Folienstapel bilden. Durch diese Anschlussöffnungen erfolgt eine Einleitung der Fluide A und B in die Fluidkanäle (dargestellt durch Pfeile auf den Deckfolien 4) und von dort in die Zuführungen 5, um das Führungsbauteil über Einmündungen 6 in die Mischkammer zu verlassen. Die Fläche des Führungsbauteils 1 im Bereich der Einmündungen 6 bildet dabei die ebene Wandung 9 der Mischkammer. Die abwechselnde Schichtfolge der Folien 2 und 3 setzt sich in den Bereich 10 bis zur Deckfolie 4 fort.

[0017] Fig.2 zeigt anhand Detailansichten die Deckfolien 4 mit den Anschlussöffnungen 7 sowie den Folien 2 und 3 mit den Durchbrüchen 8, sowie die Kanalstrukturen, umfassend die Zuführungen 5 und die Einmündungen 6 im Bereich der Wandung 9. Im Rahmen dieser Ausführungsform mündet je Folie nur eine Zuführung 5 aus jeden Durchbruch 8 aus, wobei die Durchbrüche die Fluidkanäle für die Fluidfraktionen A und B in abwechselnder Reihenfolge bilden. Jede Folie bildet somit eine Ebene mit Einmündungen der Fluidfraktionen A und B in abwechselnder Reihenfolge. Andererseits sind die Kanalstrukturen von Folie 2 und 3 nicht deckungsgleich, sondern weisen versetzt zueinander angeordnete Einmündungen 6 und Zuführungen 5 auf. Sind die Einmündungen der ersten Folien 2 und der zweiten Folien 3 um jeweils eine Einmündung versetzt, erhält man das in Fig. 1a und b dargestellte Schachbrettmuster der Einmündungen 6 der Fluide A und B, wobei die Einmündungen im Winkel von 90° zur Wandung 9 orientiert sind (vgl. Fig.2).

[0018] Alternativ Idealerweise sind die Einmündungen 6 der Fluidfraktionen A und B zugunsten einer laminaren Vermischung der vorgenannten Fluidstromfäden in der Mischkammer parallel zueinander orientiert (vgl. Fig.2). Dabei bieten sich grundsätzlich Winkel größer 0° vorzugsweise zwischen 45 und 90° an.

[0019] Ein ungleicher Winkel und damit ein Überkreuzen der Fluidstromfäden sind dagegen grundsätzlich an-

zustreben, wenn eine gezielte Einstellung eines turbulenten Strömungszustands unmittelbar an den Einmündungen angestrebt wird. Der Winkelunterschied liegt dabei bevorzugt oberhalb 10°. Liegt er oberhalb von 90°, kommt es zu einem Gegeneinanderströmen der Fluidstromfäden und damit zu einem unerwünschten erhöhten Staudruck.

[0020] Eine zweite Ausführungsform des statischen Mikrovermischers geben **Fig.3 bis 5** wieder. Sie zeichnet sich durch eine um eine Symmetrieachse 13 rotations-symmetrische vorzugsweise zylinderförmige Mischkammer 12 mit zwei Endbereichen aus. Das Führungsbauteil 1 umfasst wie in der ersten Ausführungsform eine Vielzahl von Folien 2 und 3 mit Fluidkanäle bildenden Durchbrüchen 8 und Kanalstrukturen, d.h. den Zuführungen 5 und Einmündungen 6, sowie eine Deckfolie 4 mit den Anschlussöffnungen 7 für eine Zuführung der Fluide A und B. Das Führungsbauteil 1 ist wiederum dichtend auf ein Mischkammergehäuse 14 aufgesetzt, -geklebt oder -geschweißt. Vorzugsweise ist die Symmetrieachse orthogonal zu den Ebenen, die durch die Folien gebildet werden ausgerichtet.

[0021] Die Folien 2 und 3 und damit die Einmündungen (vgl. **Fig.3 und 4**) und die Ausmündungen 11 (vgl. **Fig. 3**) befinden sich in je einem dieser Endbereiche, wobei das vorgenannte Führungsbauteil 1 das eine Ende der rotationssymmetrischen Mischkammer 12 vollständig umschließt. Analog zu den in **Fig.2** dargestellten Folien 2 und 3 weisen die dargestellten Zuführungen 5 auf der zweiten Folie 3 einen Versatz zu den Durchbrüchen 8 auf, womit sich die Einmündungen 6 an der Mischkammerwandung 9 bei abwechselnder Reihenfolge der Folien 2 und 3 und bei einer um je eine Einmündung pro Ebene (Folie) versetzter Anordnung der Einmündungen gemäß eines Schachbrettmusters anordnen (vgl. **Fig.4 und 5**).

[0022] In der dargestellten Form sind die Einmündungen zur Symmetrieachse hin ausgerichtet und bilden mit dieser jeweils einen rechten Winkel. Alternativ lassen sich die Einmündungen windschief zu der Symmetrieachse anordnen, womit man in einer rotationssymmetrischen Mischkammer eine Strömungsrichtung, vorzugsweise eine wendelförmige insbesondere im außen liegenden Bereich der Mischkammer, vorgibt. Dabei bietet es sich an, die Mischkammer als Ringspaltvolumen zu gestalten und/oder die Ausmündungen in Strömungsrichtung anzuordnen. Vorzugsweise sind die Ausmündungen außerhalb der Symmetrieachse angeordnet. Eine möglichst stricte gleichartige geometrische Ausrichtung aller Einmündungen in ihrer Anordnung zu der Symmetrieachse für beide der Fluidfraktionen begünstigt eine laminare Vermischung der Fluidstromfäden in vorgenannter Weise.

[0023] **Fig.6** zeigt eine Schnittdarstellung einer weiteren Ausführungsform mit Ringspaltvolumen als rotationssymmetrische Mischkammer 12. Sie unterscheidet sich von der in **Fig.3 bis 5** dargestellten zweiten Ausführungsform durch den um die Symmetrieachse 13 ange-

ordneten Kern 15. Sind die Einmündungen im vorgenannten Sinne windschief zu der Symmetrieachse 13 und zu dieser auch gleichartig ausgerichtet, baut sich im Ringspaltvolumen um den Kern 15 in Richtung der Ausmündung 11 eine Strömungswendel auf. **Fig.6** zeigt zudem beispielhaft den Verlauf der durch die Durchbrüche der Folien 2 und 3 gebildeten Fluidkanäle 16.

[0024] **Fig.8** zeigt die Ausführungsform gemäß **Fig.6**, jedoch mit einer Temperier Vorrichtung in der Mischkammergehäuseseitigen Mischkammerwandung. In der dargestellten Ausführung umfasst die Temperaturvorrichtung einen mikrofluidischen Wärmetauscher mit Mikrokanalstruktur und einem durchfließenden Temperiermedium, d.h. mit zwei Anschlüssen 1 und zwei Verteilerkanälen 18, zwischen denen eine Vielzahl von parallel geschalteten Einzelkanälen 19 das Mischkammergehäuse 14 durchdringt.

[0025] Alternativ lassen sich auch andere Komponenten des statischen Mikrovermischers temperieren, d.h. heizen oder kühlen, wie z.B. im Bereich des Kerns, selektiv die Zuführungen und Einmündungen für eine Fluidfraktion oder die Ausmündung. Insbesondere bei einer Temperierung der Einmündungen lassen sich unerwünschte Auswirkungen von größeren Temperatur- und Druckgradienten, beispielsweise Kavitation oder Änderungen des Aggregatzustands, bei Eintritt von Fluidstromfäden einer Fluidfraktion aus den Einmündungen in die Mischkammer reduzieren.

[0026] **Fig.8** zeigt einen Kern 15 (vgl. **Fig.6 und 7**), welcher als doppeltes Rohr in zwei Teilvolumina unterteilt ist. Im Innenrohr 20 wird das Temperiermedium axial in eine Richtung zum einen Ende des Kerns geführt, um es zwischen Innen- und Außenrohr unter Wärmeabgabe in den umgebenden Bereich der Mischkammer 12 axial wieder zurück zuleiten.

Bezugszeichenliste

[0027]

- | | |
|----|-----------------------|
| 1 | Führungsbauteil |
| 2 | erste Folie |
| 3 | zweite Folie |
| 4 | Deckfolie |
| 5 | Zuführung |
| 6 | Einmündung |
| 7 | Anschlussöffnung |
| 8 | Durchbruch |
| 9 | Wandung |
| 10 | fortlaufender Bereich |
| 11 | Ausmündung |
| 12 | Mischkammer |
| 13 | Symmetrieachse |
| 14 | Mischkammergehäuse |
| 15 | Kern |
| 16 | Fluidkanal |

Patentansprüche

1. Statischer Mikrovermischer umfassend

- a) eine Mischkammer (12),
- b) Zuführungen (5) für mindestens zwei zu mischende oder zu dispergierende Fluidfraktionen mit je mindestens einer Einmündung (6) in die Mischkammer sowie
- c) mindestens eine Ausmündung (11) aus der Mischkammer

dadurch gekennzeichnet, dass

- d) die Einmündungen der Fluidfraktionen in abwechselnder Reihenfolge in mindestens zwei Ebenen angeordnet sind, wobei die Einmündungen einer Ebene zu denen in der jeweils benachbarten Ebene versetzt angeordnet sind.

2. Statischer Mikrovermischer nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Einmündungen (6) einer Ebene zu denen in der jeweils benachbarten Ebene um jeweils eine Einmündung versetzt angeordnet sind.

3. Statischer Mikrovermischer nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** alle Einmündungen je Fluidfraktion in einem Winkel zur Wandung (9) der Mischkammer ausgerichtet sind, wobei dieser Winkel zwischen 0 und 90° liegt.

4. Statischer Mikrovermischer nach einem der vorgenannten Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Ebenen durch gestapelte Folien (2, 3) mit Rillen als Fluidführungen gebildet sind, wobei die Zuführungen (5) pro Fluidfraktion über Fluidkanäle, umfassend übereinander liegende Durchbrüche (8) in den Folien, fluidisch miteinander verbunden sind.

5. Statischer Mikrovermischer nach einem der vorgenannten Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Mischkammer (12) rotationssymmetrisch mit einer Symmetrieachse (13) und zwei Endbereichen gestaltet ist, wobei die Ausmündungen (11) und die Einmündungen (6) in je einem der Endbereiche positioniert sind.

6. Statischer Mikrovermischer nach Anspruch 5, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Symmetrieachse (13) orthogonal zu den Ebenen ausgerichtet ist.

7. Statischer Mikrovermischer nach Anspruch 5 oder 6, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Einmündungen (6) windschief zu der Symmetrieachse (13) angeordnet sind.

8. Statischer Mikrovermischer nach Anspruch 7, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Mischkammer (12) ein Ringspaltvolumen ist.

9. Statischer Mikrovermischer nach einem der Ansprüche 5 bis 8, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Ausmündungen (11) außerhalb der Symmetrieachse (13) angeordnet sind.

10. Statischer Mikrovermischer nach einem der Ansprüche 5 bis 9, **dadurch gekennzeichnet, dass** alle Einmündungen (6) in ihrer Anordnung zu der Symmetrieachse (13) für jede Fluidfraktion gleichartig ausgerichtet sind.

11. Statischer Mikrovermischer nach einem der Ansprüche 5 bis 10, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Einmündungen (6) in der Mischkammer (12) eine Strömungsrichtung vorgeben sowie die Ausmündungen (11) in ihrer Anordnung zu der Symmetrieachse gleichartig ausgerichtet sind.

12. Statischer Mikrovermischer nach einem der vorgenannten Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Ausmündungen (11) in einer Strömungsrichtung ausgerichtet sind.

13. Statischer Mikrovermischer nach einem der vorgenannten Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Mischkammer Wandungen (9) mit einer Temperierungsvorrichtung aufweist.

14. Statischer Mikrovermischer nach Anspruch 10, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Temperierungsvorrichtung eine Mikrokanalstruktur mit einem durchfließenden Temperiermedium umfasst.

Fig. 1

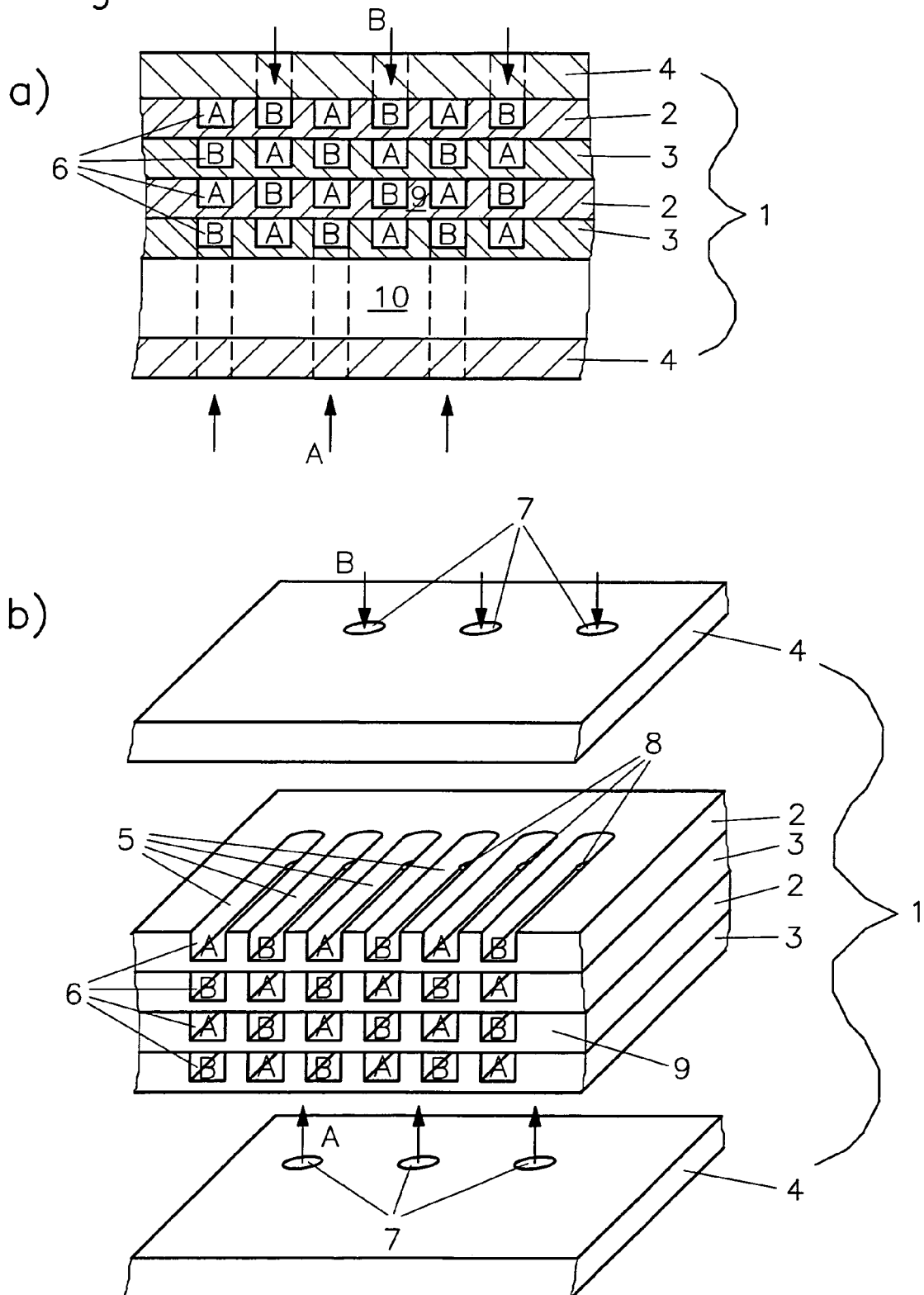


Fig. 2

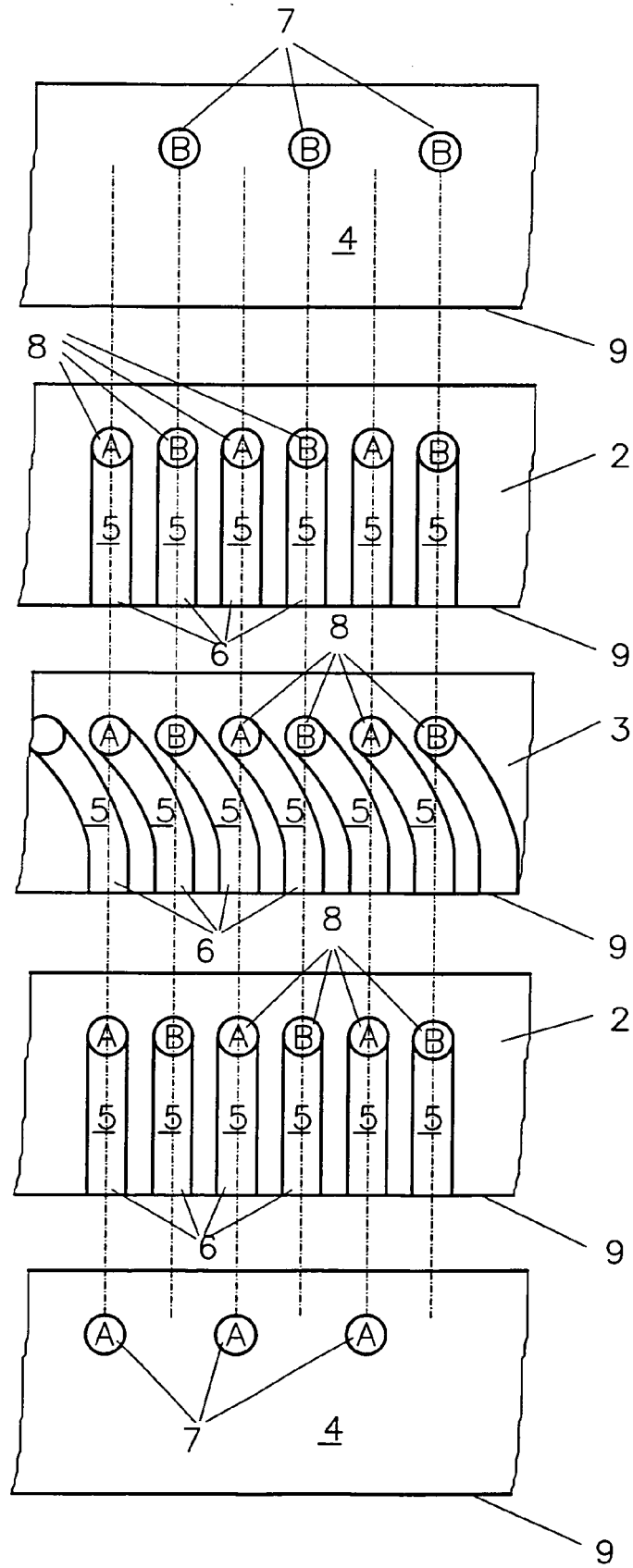


Fig. 3

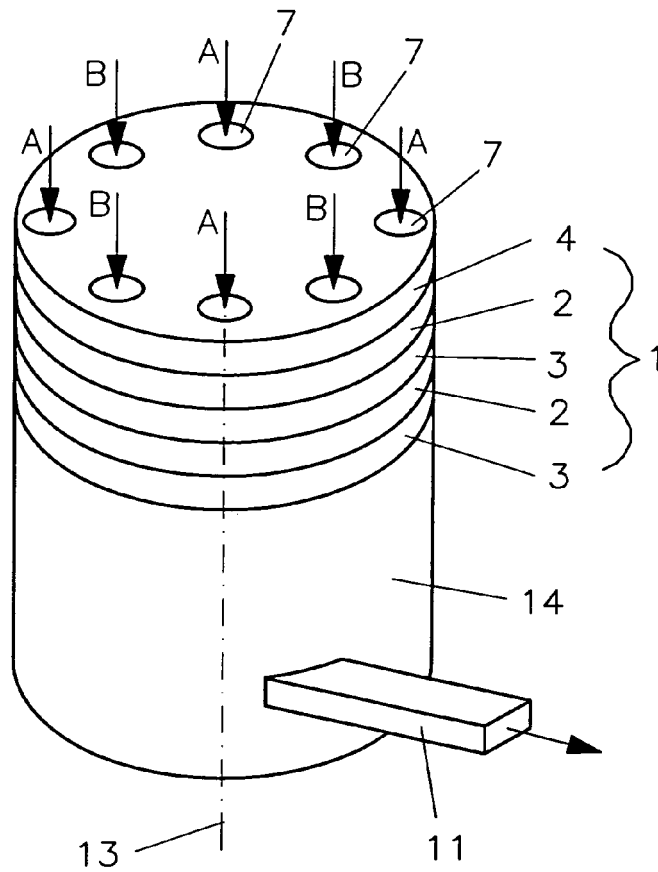


Fig. 4

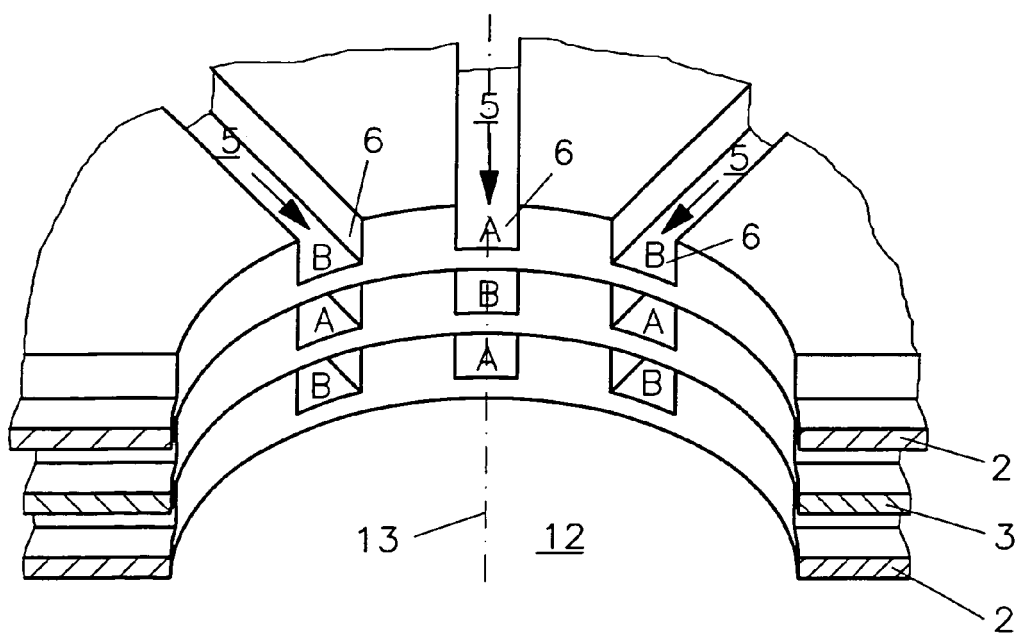


Fig. 5

