

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 985 235**

51 Int. Cl.:

B27N 3/04	(2006.01) B29C 49/00	(2006.01)
B27N 3/12	(2006.01) B29C 49/22	(2006.01)
B27N 3/20	(2006.01) B29C 51/00	(2006.01)
B27N 3/22	(2006.01) B29C 51/08	(2006.01)
B27N 5/00	(2006.01) B30B 5/02	(2006.01)
B27N 5/02	(2006.01) B31B 50/59	(2007.01)
B29B 13/06	(2006.01) B29C 51/16	(2006.01)
B29C 43/02	(2006.01) B29K 311/10	(2006.01)
B29C 43/20	(2006.01)	
B29C 43/46	(2006.01)	

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **16.03.2017** **E 22167476 (5)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **21.02.2024** **EP 4043353**

54 Título: **Método para fabricar un producto de celulosa, aparato de formación de productos de celulosa y producto de celulosa**

30 Prioridad:

18.03.2016 SE 1630058

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:
04.11.2024

73 Titular/es:

PULPAC AB (100.0%)
Amalia Jönssons gata 16
421 31 Västra Frölunda, SE

72 Inventor/es:

LARSSON, OVE y
LARSSON, LINUS

74 Agente/Representante:

VALLEJO LÓPEZ, Juan Pedro

ES 2 985 235 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Método para fabricar un producto de celulosa, aparato de formación de productos de celulosa y producto de celulosa

5 **Campo técnico**

La presente divulgación se refiere a un método para fabricar un producto de celulosa a partir de fibras de celulosa. La divulgación se refiere además a un aparato de formación de productos de celulosa y a un producto de celulosa.

10 **Antecedentes**

Hay muchas situaciones donde es deseable proporcionar objetos fabricados con materiales sostenibles en formas planas o esencialmente no planas. Una forma plana puede hacer referencia a una forma generalmente bidimensional (2D), tal como, por ejemplo, la forma de un material laminar o una pieza en bruto, y las formas esencialmente no planas pueden hacer referencia a cualquier forma de objeto tridimensional (3D) adecuada. Una de estas situaciones se relaciona con el envasado de líquidos, materiales secos y diferentes tipos de productos, donde el envasado puede realizarse en una forma tridimensional o conformarse en una forma tridimensional a partir de un material laminar bidimensional.

Por ejemplo, cuando se envasan productos delicados, tales como artículos mecánicos de alta precisión, equipos electrónicos y otros artículos domésticos y de hardware, se hace necesario un envasado protector con el fin de evitar daños en los productos delicados, debidos, por ejemplo, a golpes mecánicos, vibraciones o compresión durante el transporte, almacenamiento u otra manipulación. Dichos envases requieren habitualmente un accesorio protector que tenga una forma adaptada a los productos contenidos y, por lo tanto, sujete de manera segura los productos en el envase. Dichos accesorios suelen fabricarse de poliestireno expandido (EPS), que es un material ligero derivado del petróleo y no se considera un material sostenible.

Un material de bajo precio habitualmente usado para los accesorios de envasado es la pulpa moldeada. La pulpa moldeada tiene la ventaja de considerarse como un material de envasado sostenible, ya que se produce a partir de biomateriales y puede reciclarse después de su uso. Como consecuencia, la popularidad de la pulpa moldeada ha aumentado rápidamente tanto para aplicaciones de envasado primario como secundario (envasado junto al artículo y ensamblaje de dichos envases). En general, los artículos de pulpa moldeada se forman sumergiendo un molde de aspiración en una suspensión de pulpa, mientras se aplica aspiración, por lo que se forma un cuerpo de pulpa con la forma del artículo deseado por deposición de fibras. A continuación, se retira el molde de aspiración de la suspensión y, en general, se continúa la aspiración para compactar las fibras depositadas mientras se extrae el líquido residual.

Una desventaja común con todas las técnicas de formación en húmedo es la necesidad de secar el producto moldeado, que es una etapa que consume tiempo y energía. Otro inconveniente es que fuertes enlaces entre fibras, a menudo explicados como enlaces de hidrógeno, se forman entre las fibras en el material, lo que restringe la flexibilidad del material.

Además, muchas líneas modernas de producción ajustada requieren la fabricación de envases o componentes en línea y bajo demanda, cuando no se prefiere un proceso de formación en húmedo.

Últimamente, se han desarrollado nuevos materiales a base de fibras con el fin de permitir la formación en seco de objetos tridimensionales. Un enfoque se desvela en el documento WO 2014/142714 A1, donde una banda compuesta depositada en seco, que es un producto intermedio para el termoformado de objetos de forma tridimensional, comprende un 40-95 por ciento en peso de fibras CTMP, un 5-50 por ciento en peso de material termoplástico y un 0-10 por ciento en peso de aditivos, en donde la banda compuesta depositada en seco se ha impregnado con una dispersión, una emulsión, o una solución que contiene el material termoplástico, polímero, y secado, obteniendo una densidad de 50-250 kg/m³, o, si se comprime por calandrado 400-1000 kg/m³. De acuerdo con la divulgación del documento WO 2014/142714 A1, la unión del polímero se activa por la temperatura más alta aplicada en el proceso de termoformado y contribuye a la resistencia final del objeto termoformado.

Aunque el polímero de acuerdo con la divulgación del documento WO 2014/142714 A1 puede contribuir a la resistencia final y permitir la formación de una banda depositada en seco, dicho ingrediente termoplástico borraría las características sostenibles de la celulosa, ya que el compuesto no será reciclable. Esta desventaja es aplicable incluso si un bioplástico renovable y compostable, por ejemplo, la polilactida (PLA), se usa como se propone en el documento WO 2014/142714 A1, ya que no se dispone de logística para el reciclaje de materiales.

Descubrimientos recientes y decisiones políticas, por ejemplo, el acuerdo de París sobre el calentamiento global de 2015, establecen que la huella de carbono de los productos y envases consumidos, en el llamado análisis de ciclo de vida (ACV), está muy influenciada por la capacidad de reciclar y reutilizar materiales. Incluso los materiales renovables como la celulosa y el PLA deben reciclarse para estar a la altura de los materiales no renovables reciclados múltiples como el tereftalato de polietileno (PET).

El reciclaje de materiales se está consolidando lenta y gradualmente en la mayor parte del mundo. Europa tiene el liderazgo mundial con aproximadamente un 30 % de reciclaje, mientras que Estados Unidos solo ha alcanzado el 10 % y muchos países en desarrollo aún no han comenzado a reciclar. Común a todos los esfuerzos de reciclaje es un enfoque sobre los materiales más frecuentemente usados, tales como papel, cartón, vidrio, aluminio, acero y PET. Estas fracciones reciclables representan la gran mayoría de los productos desechados y no es probable que otras fracciones, como los biopolímeros, se establezcan como la logística de reciclaje disponible para el público en un futuro previsible.

La demanda mundial de envases, cajas, perchas, botellas, tazas, platos, cuencos, accesorios y cubiertas formados en 3D en material renovable y reciclable con propiedades mecánicas cercanas a los plásticos, es, por lo tanto, enorme.

En la publicación, ISBN 978-91-7501-518-7 (Helena Halonen, Octubre 2012), se ha estudiado un posible enfoque para usar el moldeo por compresión de pulpas de madera químicas comerciales procesadas solo con agua. El objetivo era estudiar los cambios estructurales durante el procesamiento y la complejidad de relacionar las propiedades mecánicas de los biocompuestos finales con la estructura a escala nanométrica.

La combinación de alta temperatura (150-170 °C) y alta presión (45 MPa) durante el moldeo por compresión produce un aumento notable en la agregación de fibrillas, posiblemente incluyendo enlaces de fusión celulosa-celulosa, es decir, la agregación de fibrillas en la región de enlace fibra-fibra. Esta agregación de fibrillas da como resultado un biocompuesto con propiedades mecánicas notables que incluyen una resistencia (289 MPa), un módulo (12,5 GPa) y una tenacidad (6 %) mejorados en comparación, por ejemplo, con la resistencia del PET (75 MPa) y el módulo del PET (PET 3 GPa).

Aunque el documento WO2014142714A1 propone un ingrediente termoplástico no reciclable y el ISBN 978-91-7501-518-7 presenta resultados científicos para formar fibras de celulosa reciclables para obtener buenas propiedades mecánicas, hasta ahora no se ha inventado ningún método práctico o industrial que permita la producción comercial, con un tiempo de ciclo razonable, de envases y productos en celulosa, en sustitución de plásticos, que puedan reciclarse, tal como el cartón.

El documento US2003029591 A1 desvela la formación de botellas de celulosa mediante un proceso de formación en húmedo.

En vista de los inconvenientes mencionados anteriormente y otros del estado de la técnica, un objetivo de la presente invención es proporcionar una producción rentable y racional de un producto de celulosa con propiedades mecánicas mejoradas.

Sumario

La invención se define por un método para fabricar un producto de celulosa de acuerdo con la reivindicación 1; y por un aparato de formación de productos de celulosa de acuerdo con la reivindicación 6. La presente invención también se refiere a un producto de celulosa que es una botella hueca, de acuerdo con la reivindicación 14.

Las reivindicaciones dependientes contienen desarrollos adicionales del método para fabricar un producto de celulosa, el aparato de formación de productos de celulosa y el producto de celulosa.

Hay muchas situaciones donde es deseable proporcionar objetos fabricados con materiales sostenibles en formas planas o esencialmente no planas. Una forma plana puede hacer referencia a una forma generalmente bidimensional, tal como, por ejemplo, la forma de un material laminar o una pieza en bruto, y las formas esencialmente no planas pueden hacer referencia a cualquier forma de objeto tridimensional adecuada. Una de estas situaciones se relaciona con el envasado de líquidos, materiales secos y diferentes tipos de productos, donde el envasado puede realizarse en una forma tridimensional o conformarse en una forma tridimensional a partir de un material laminar bidimensional.

La divulgación se refiere a un método para fabricar un producto de celulosa que tiene una forma no plana de acuerdo con la reivindicación 1 y a un aparato de formación de productos de celulosa para fabricar un producto de celulosa que tiene una forma no plana de acuerdo con la reivindicación 6. Se pueden encontrar variaciones del método y el aparato en las reivindicaciones dependientes.

Con la formación en seco de la pieza en bruto de celulosa se entiende un proceso en el que las fibras de celulosa se depositan por aire para formar la pieza en bruto de celulosa. Cuando se forma la pieza en bruto de celulosa en el proceso de depositado por aire, las fibras de celulosa se transportan y se forman en la estructura en bruto por el aire como medio de transporte. Esto es diferente de un proceso normal de fabricación de papel, donde se usa agua como medio de transporte de las fibras de celulosa cuando se forma la estructura de papel. En el proceso de depositado por aire, puede añadirse agua u otras sustancias a las fibras de celulosa con el fin de cambiar las propiedades de la pieza en bruto de celulosa, pero el aire todavía se usa como medio de transporte en el proceso de formación.

Las ventajas de estas características son que el producto de celulosa se fabrica en un proceso de formación en seco,

donde la pieza en bruto de celulosa se forma en seco a partir de fibras de celulosa en la unidad de formación en seco. Calentando y prensando la pieza en bruto de celulosa, se logran productos de celulosa con buenas propiedades materiales. Los productos de celulosa pueden ser, por ejemplo, una botella, un recipiente o una parte de un recipiente, donde el producto de celulosa fabricado de acuerdo con el método puede reemplazar productos de plástico que son más difíciles de reciclar. Otros productos de celulosa fabricados de acuerdo con el método pueden ser, por ejemplo, envases, accesorios para envases, perchas, cajas, cuencos, platos, tazas, bandejas o cubiertas. Al prensar las fibras de celulosa con la presión de formación de al menos 1 MPa con una temperatura de formación en el intervalo de 100 °C a 200 °C, las fibras de celulosa se unirán entre sí, de manera que el producto de celulosa resultante tendrá buenas propiedades mecánicas. Las pruebas han demostrado que las temperaturas de formación más altas darán una unión más fuerte entre las fibras de celulosa cuando se presionen a una presión de formación específica. Con temperaturas de formación superiores a 100 °C junto con una presión de formación de al menos 1 MPa, las fibras de celulosa se unirán fuertemente entre sí. Una temperatura de formación más alta aumentará la agregación de fibrillas, la resistencia al agua, el módulo de Young y las propiedades mecánicas del producto de celulosa final. La alta presión es importante para la agregación de fibrillas entre las fibras de celulosa en el producto de celulosa. A temperaturas superiores a 200 °C, las fibras de celulosa se degradarán térmicamente y, por lo tanto, deberían evitarse temperaturas superiores a 200 °C.

De acuerdo con un aspecto de la divulgación, la pieza en bruto de celulosa se transforma en un producto de celulosa que tiene una forma plana o esencialmente no plana. De este modo, pueden fabricarse muchos tipos diferentes de productos, incluyendo piezas en bruto esencialmente bidimensionales que pueden usarse para formar productos tridimensionales.

De acuerdo con otro aspecto de la divulgación, la presión de formación está en el intervalo de 1 MPa a 100 MPa. Dentro de este intervalo de presión, puede lograrse la formación de los productos de celulosa con las propiedades deseadas, y puede ajustarse el nivel de presión para adaptarse a las necesidades específicas de los tipos de productos a formar.

De acuerdo con otro aspecto de la divulgación, el calentamiento de la pieza en bruto de celulosa tiene lugar al menos parcialmente antes de prensar la pieza en bruto de celulosa. Con esta opción, la pieza en bruto de celulosa puede precalentarse antes de prensar la pieza en bruto de celulosa en el molde de formación. Como alternativa, la pieza en bruto de celulosa puede precalentarse hasta cierto punto antes del prensado y calentarse aún más cuando se prensa.

De acuerdo con otro aspecto de la divulgación, el molde de formación se calienta antes de prensar la pieza en bruto de celulosa. A través del calentamiento del molde de formación, el calor se transferirá a la pieza en bruto de celulosa cuando se coloque en el molde de formación. De este modo, la temperatura de formación de la pieza en bruto de celulosa puede lograrse de forma eficaz a través de la transferencia de calor desde el molde de formación.

De acuerdo con un aspecto de la divulgación, la unidad de formación en seco comprende una unidad de separación, un alambre de formación y una unidad de compactación, donde el método comprende además las etapas de: separar la celulosa en fibras de celulosa desprendidas en la unidad de separación; disponer las fibras de celulosa sobre el alambre de formación; y compactar las fibras de celulosa en la unidad de compactación para formar la pieza en bruto de celulosa. De este modo se consigue una formación eficiente de la pieza en bruto de celulosa. La unidad de formación en seco puede estar dispuesta como una unidad de proceso, que es parte de un proceso de fabricación continuo en el que se produce el producto de celulosa. La unidad de formación en seco podría también colocarse lejos del aparato de formación de celulosa, mientras que la pieza en bruto de celulosa se puede suministrar preferiblemente en rollos al aparato de formación de celulosa.

De acuerdo con otro aspecto de la divulgación, el método comprende además la etapa de: aplicar un agente de encolado a las fibras de celulosa para aumentar las propiedades hidrofóbicas y/o la resistencia mecánica de la pieza en bruto de celulosa. Pueden usarse diferentes tipos de agentes de encolado con el fin de aumentar las propiedades hidrofóbicas y/o la resistencia mecánica del producto de celulosa producido a partir de la pieza en bruto de celulosa, lo que puede depender del tipo de producto producido. Como ejemplo, los agentes de encolado pueden ser fluoroquímicos, dímero de alquilceteno (AKD), anhídrido alquénil succínico (ASA), colofonia (encolado ácido), cera, lignina y vidrio soluble (silicato de sodio).

De acuerdo con otro aspecto de la divulgación, la pieza en bruto de celulosa se forma como una banda de celulosa continua en la unidad de formación en seco. La banda de celulosa continua puede usarse en un proceso de fabricación continuo, donde la banda de celulosa continua se forma en seco a partir de fibras de celulosa en la unidad de formación en seco y, a continuación, se transporta al molde de formación.

De acuerdo con otro aspecto de la divulgación, la banda de celulosa continua se alimenta intermitentemente al molde de formación por una unidad de alimentación. A través de la alimentación intermitente de la banda de celulosa continua al molde de formación, la formación de la banda de celulosa continua y la formación del producto de celulosa en el molde de formación pueden ser parte de la misma unidad de producción para una producción eficiente de productos de celulosa a partir de fibras de celulosa.

Las ventajas con las características del aparato de formación de productos de celulosa son que el producto de celulosa se fabrica en un aparato de formación de productos de celulosa en un proceso de formación en seco, donde la pieza en bruto de celulosa se forma en seco a partir de fibras de celulosa en la unidad de formación en seco. Calentando y prensando la pieza en bruto de celulosa, se logran productos de celulosa con buenas propiedades materiales.

De acuerdo con un aspecto de la divulgación, la pieza en bruto de celulosa se transforma en el molde de formación en un producto de celulosa que tiene una forma plana o esencialmente no plana. Pueden fabricarse muchos tipos diferentes de productos, incluyendo piezas en bruto esencialmente bidimensionales que pueden usarse para formar productos tridimensionales.

De acuerdo con otro aspecto de la divulgación, la unidad de formación en seco comprende una unidad de separación para separar la celulosa en fibras de celulosa desprendidas, un alambre de formación para las fibras de celulosa y una unidad de compactación para compactar las fibras de celulosa para formar la pieza en bruto de celulosa.

De acuerdo con otro aspecto de la divulgación, el molde de formación se calienta mediante una unidad de calentamiento. Con la unidad de calentamiento, la pieza en bruto de celulosa puede precalentarse antes de prensar la pieza en bruto de celulosa en el molde de formación. Como alternativa, la pieza en bruto de celulosa puede precalentarse hasta cierto punto antes del prensado y calentarse aún más cuando se prensa. La unidad de calentamiento puede integrarse en el molde de formación de manera que el calor se transfiera a la pieza en bruto de celulosa cuando se coloque en el molde de formación. De este modo, la temperatura de formación de la pieza en bruto de celulosa puede lograrse de forma eficaz a través de la transferencia de calor desde el molde de formación.

De acuerdo con un aspecto de la divulgación, se aplica un agente de encolado u otras sustancias a las fibras de celulosa mediante una unidad de aplicación. La unidad de aplicación puede tener, por ejemplo, la forma de una boquilla de pulverización o un dispositivo similar, que añade el agente de encolado a las fibras de celulosa en la unidad de formación en seco. De acuerdo con otros aspectos de la divulgación, la unidad de formación en seco está formando la pieza en bruto de celulosa como una banda de celulosa continua y, además, la banda de celulosa continua se alimenta intermitentemente al molde de formación por una unidad de alimentación. La banda de celulosa continua puede usarse en un proceso de fabricación continuo, donde la banda de celulosa continua se forma en seco a partir de fibras de celulosa en la unidad de formación en seco y, a continuación, se transporta al molde de formación. A través de la alimentación intermitente de la banda de celulosa continua al molde de formación por la unidad de alimentación, la formación de la banda de celulosa continua y la formación del producto de celulosa en el molde de formación pueden ser parte de la misma unidad de producción para una producción eficiente de productos de celulosa a partir de fibras de celulosa.

La divulgación también se refiere a un producto de celulosa que tiene una forma plana o esencialmente no plana. El producto de celulosa puede comprender al menos el 90 por ciento en peso de fibras de celulosa.

Breve descripción de los dibujos

Estos y otros aspectos de la presente divulgación se describirán a continuación con más detalle, con referencia a los dibujos adjuntos que muestran realizaciones a modo de ejemplo de la divulgación, en donde:

- Figura 1 muestra esquemáticamente, un aparato de formación de productos de celulosa de acuerdo con la divulgación;
- Figuras 2 a-b muestran esquemáticamente una primera configuración alternativa del dispositivo de compresión, actualmente no reivindicado, usando una membrana multiuso, que muestra una etapa inicial (a) y una etapa comprimida (b) de acuerdo con una realización a modo de ejemplo de la presente divulgación;
- Figuras 3 a-b muestran esquemáticamente una segunda configuración alternativa del dispositivo de compresión, actualmente no reivindicado, compuesto por una barrera integrada de material de un solo uso, que muestra la etapa inicial (a) y la etapa comprimida (b) de acuerdo con una realización a modo de ejemplo de la presente divulgación;
- Figuras 4 a-d muestran esquemáticamente una tercera configuración alternativa del dispositivo y componente de compresión, usando una barrera integrada de material de un solo uso y moldeo por soplado, que muestra la etapa inicial (a & b) y la etapa comprimida (c) de acuerdo con una realización a modo de ejemplo de la presente divulgación;
- Figuras 5 a-b muestran esquemáticamente una cuarta configuración alternativa del dispositivo de compresión, actualmente no reivindicado, usando una membrana multiuso, que muestra la etapa inicial (a) y la etapa comprimida (b) de acuerdo con una realización a modo de ejemplo de la presente divulgación;
- Figuras 6 a-c muestran esquemáticamente una quinta configuración alternativa del dispositivo de compresión, actualmente no reivindicado, usando el control de presión de compensación de cavidad, que muestra la etapa inicial (a & b) y la etapa comprimida (c) de acuerdo con una realización a modo de ejemplo de la presente divulgación;
- Figuras 7 a-b muestran esquemáticamente una sexta configuración alternativa del dispositivo de compresión, actualmente no reivindicado, usando la compensación de espesor de pieza en bruto, que muestra la

etapa inicial (a) y la etapa comprimida (b) de acuerdo con una realización a modo de ejemplo de la presente divulgación; y

Figuras 8a-c muestran esquemáticamente una configuración alternativa del dispositivo de compresión, actualmente no reivindicado, usando una membrana flexible maciza, de acuerdo con la divulgación;

5 y

Figuras 9a-c muestran esquemáticamente otra configuración alternativa del dispositivo de compresión, actualmente no reivindicado, usando una membrana flexible maciza, de acuerdo con la divulgación.

Descripción de las realizaciones a modo de ejemplo

En lo sucesivo, se describirán diversos aspectos de la divulgación junto con los dibujos adjuntos para ilustrar y no limitar la divulgación, en donde las designaciones similares indican elementos similares, y las variaciones de los aspectos descritos no están restringidas a las realizaciones mostradas específicamente, sino que pueden aplicarse a otras variaciones de la divulgación.

En la presente descripción detallada, se describirá un método para fabricar un producto de celulosa, un aparato de formación de productos de celulosa y un producto de celulosa.

Diversas realizaciones de materiales laminares o piezas en bruto de acuerdo con la divulgación se exponen principalmente con referencia a una pieza en bruto de celulosa colocada en posición para formar en un molde de formación, una forma plana. Cabe señalar que esto de ninguna manera limita el alcance de la presente invención, que igualmente incluye también, por ejemplo, una pieza en bruto preformada en un objeto tridimensional. Por ejemplo, la pieza en bruto puede presentarse en el molde de formación en una forma similar a la forma final deseada del objeto. Otra realización podría comprender una pieza en bruto de celulosa, que se suministra al molde en una banda en un rollo.

Una forma plana puede hacer referencia a una forma generalmente bidimensional (2D), tal como, por ejemplo, la forma de una pieza en bruto o un material laminar, y las formas esencialmente no planas pueden hacer referencia a cualquier forma tridimensional (3D) adecuada. Un objeto de acuerdo con la divulgación puede realizarse en una forma bidimensional, una forma tridimensional, o conformarse en una forma tridimensional a partir de una pieza en bruto o material laminar bidimensional.

Además, mostrando esquemáticamente una lámina coherente de fibras de celulosa, esto de ninguna manera limitará el alcance de la presente invención, que igualmente incluye también, por ejemplo, piezas en bruto con fibras sueltas y separadas aplicadas al molde de formación.

En la presente descripción detallada, diversas realizaciones de los productos de celulosa tridimensionales a formar y el molde para formar los productos de celulosa de acuerdo con la presente invención se exponen principalmente con referencia a un cuenco hueco, una taza hueca o una botella hueca, con un espesor mayoritariamente uniforme. Cabe señalar que esto de ninguna manera limita el alcance de la presente invención, que igualmente incluye también, por ejemplo, formas complejas con diferentes espesores, partes no huecas u objetos macizos. Por ejemplo, el objeto puede comprender ventajosamente refuerzos, pliegues, agujeros, texto en forma de 3D, bisagras, cierres, roscas, broches, pies, asas o patrones de superficie.

En la figura 1, se muestra esquemáticamente un método para fabricar un producto de celulosa en un aparato de formación de productos de celulosa 18, donde una pieza en bruto de celulosa 1a se forma en seco en una unidad de formación en seco 11, dispuesta en un molde de formación 3, se calienta a una temperatura de formación y se prensa en el molde de formación 3 con una presión de formación. En una primera etapa, la pieza en bruto de celulosa 1a se forma en seco en la unidad de formación en seco 11. La unidad de formación en seco 11 se ilustra esquemáticamente en la figura 1 con una línea de puntos y comprende una unidad de separación 13, una caja de formación 23, un alambre de formación 14 y una unidad de compactación 15. La pieza en bruto de celulosa 1a se transforma en el método en un producto de celulosa que tiene una forma plana o esencialmente no plana.

En la unidad de separación 13, la celulosa se separa en fibras de celulosa desprendidas 12. La celulosa usada en la unidad de separación 13 puede provenir de cualquier fuente adecuada, tal como, por ejemplo, pulpa de madera y pulpa esponjosa, o fibras de celulosa procedentes del algodón, lino, cáñamo, caña de azúcar y cereales. También pueden usarse otros tipos de celulosa y, de acuerdo con el diseño de la unidad de separación 13, incluso puede ser posible reutilizar fibras de celulosa procedentes de textiles, papel, cartón u otras fuentes adecuadas. Como ejemplo, la unidad de separación puede ser un molino de martillo convencional. La pulpa esponjosa virgen estándar puede usarse como materia prima de celulosa y, por ejemplo, puede comprarse en el mercado libre en rollos. En la figura 1, se usa como materia prima un rollo 21 de, por ejemplo, pulpa esponjosa, que se alimenta a la unidad de separación 13.

Las fibras de celulosa 12 se disponen sobre el alambre de formación 14 de manera convencional dentro de la unidad de formación en seco 11. Las fibras de celulosa desprendidas 12 pueden extraerse de la unidad de separación 13 mediante un ventilador centrífugo 22 y soplar en la caja de formación 23, que, por ejemplo, puede tener la forma de

una torre de cardado de aire, dispuesta encima del alambre de formación 14. La torre o caja de formación 23 comprende una carcasa con un fondo abierto que proporciona acceso directo a las fibras de celulosa desprendidas 12 sobre el alambre de formación subyacente 14. Puede disponerse una caja de vacío 24 debajo de la parte superior del alambre de formación 14. El ventilador centrífugo 22 suministra las fibras de celulosa desprendidas 12 al interior de la caja de formación 23 y una serie de rodillos de separación de fibras 25 en una o más filas pueden disponerse en la carcasa de la caja de formación entre la entrada de fibra y la parte inferior de la carcasa de la caja de formación para distribuir las fibras de celulosa 12 uniformemente sobre el alambre de formación 14. El ventilador centrífugo 22 extrae de este modo las fibras de celulosa desprendidas 12 de la unidad de separación 13 y sopla las fibras de celulosa 12 hacia la caja de formación 23. Las fibras de celulosa 12 se atraen por el vacío en la caja de vacío 24 sobre el alambre de formación 14 con el fin de formar una banda de celulosa que se transporta adicionalmente por el alambre de formación 14 a la unidad de compactación 15. El alambre de formación 14 puede disponerse de manera convencional como una cinta sin fin fabricada, por ejemplo, de una estructura de malla tejida, pudiendo la cinta sin fin moverse continuamente con una velocidad constante cuando se forma la banda de celulosa. La densidad de la banda de celulosa puede elegirse de manera que sea adecuada para el producto de celulosa a formar.

Con el fin de formar la pieza en bruto de celulosa 1a a partir de la banda de celulosa, las fibras de celulosa 12 se compactan o calandran en la unidad de compactación 15. La unidad de compactación 15 puede diseñarse con uno o más rodillos de compactación o calandrado integrados dentro de la unidad de formación en seco 11 y el uno o más rodillos de compactación pueden disponerse junto con el alambre de formación 14. Como ejemplo, puede disponerse un rodillo de compactación encima del alambre de formación, de manera que el rodillo de compactación aplica una presión de compactación sobre la banda de celulosa formada en el proceso de formación en seco. De este modo, la pieza en bruto de celulosa 1a se forma como una banda de celulosa continua 16 en la unidad de formación en seco 11. Los rodillos de compactación o calandrado pueden calentarse cuando se compactan las fibras de celulosa 12.

La formación en seco de la pieza en bruto de celulosa 1a puede tener lugar como una etapa de proceso separado, en la que la pieza en bruto de celulosa 1a puede apilarse en láminas o disponerse como una banda enrollada, antes de formar el producto de celulosa. Como alternativa, la formación en seco de la pieza en bruto de celulosa 1a puede ser parte de un proceso continuo, como se muestra en la figura 1, en el que el producto de celulosa se fabrica en el aparato de formación de productos de celulosa, y la formación en seco de la pieza en bruto de celulosa 1a será entonces una etapa de proceso inicial antes de disponer, calentar y prensar la pieza en bruto de celulosa 1a en el molde de formación 3.

Con el fin de formar el producto de celulosa, la pieza en bruto de celulosa 1a se dispone en el molde de formación 3, donde la pieza en bruto de celulosa 1a se calienta posteriormente a una temperatura de formación en el intervalo de 100 °C a 200 °C y, a continuación, se prensa en el molde de formación 3 con una presión de formación de al menos 1 MPa. El calentamiento y prensado de la pieza en bruto de celulosa 1a en el molde de formación 3 se describirán más adelante. Las pruebas han demostrado que los niveles de presión adecuados pueden estar en el intervalo de 1-100 MPa. El calentamiento de la pieza en bruto de celulosa 1a puede tener lugar antes del prensado en el molde de formación 3 o al menos parcialmente antes del prensado en el molde de formación 3. Como alternativa, el calentamiento de la pieza en bruto de celulosa 1a tiene lugar en el molde de formación 3 cuando se prensa. El calentamiento de la pieza en bruto de celulosa 1a puede conseguirse, por ejemplo, calentando el molde de formación 3 antes de prensar la pieza en bruto de celulosa 1a. La presión también puede aplicarse antes de calentar la pieza en bruto de celulosa 1a y, por ejemplo, el calentamiento de la pieza en bruto de celulosa puede tener lugar en el molde de formación 3 durante el prensado.

Al prensar las fibras de celulosa con la presión de formación de al menos 1 MPa con una temperatura de formación en el intervalo de 100 °C a 200 °C, las fibras de celulosa 12 se unirán entre sí, de manera que el producto de celulosa resultante tendrá buenas propiedades mecánicas. Las pruebas han demostrado que temperaturas de formación más altas darán una unión más fuerte entre las fibras de celulosa 12 cuando se prensan a una presión de formación específica. Con temperaturas de formación superiores a 100 °C junto con una presión de formación de 1-100 MPa, las fibras de celulosa 12 se unirán fuertemente entre sí. Una temperatura de formación más alta aumentará la agregación de fibrillas, la resistencia al agua, el módulo de Young y las propiedades mecánicas del producto de celulosa final. La alta presión es importante para la agregación de fibrillas entre las fibras de celulosa 12 en el producto de celulosa. A temperaturas superiores a 200 °C, las fibras de celulosa 12 se degradarán térmicamente y, por lo tanto, deben evitarse temperaturas superiores a 200 °C. La presión de formación y la temperatura de formación pueden elegirse para que sean adecuadas para el producto de celulosa específico a producir.

La pieza en bruto de celulosa 1a puede disponerse en el molde de formación 3 de cualquier manera adecuada y, como ejemplo, la pieza en bruto de celulosa 1a puede disponerse manualmente en el molde de formación 3. Otra alternativa es disponer un dispositivo de alimentación para la pieza en bruto de celulosa 1a, que transporte la pieza en bruto de celulosa 1a al molde de formación. El dispositivo de alimentación podría ser, por ejemplo, una cinta transportadora, un robot industrial, o cualquier otro equipo de fabricación adecuado. Si la formación en seco de la pieza en bruto de celulosa 1a es parte de un proceso de fabricación continuo en el que se produce el producto de celulosa, como se muestra en la figura 1, la pieza en bruto de celulosa 1a puede alimentarse al molde de formación 3 desde la unidad de formación en seco 11 con el alambre de formación 14. Más específicamente, la pieza en bruto de celulosa 1a podría alimentarse intermitentemente al molde de formación 3 por una unidad de alimentación 17 si el alambre de formación

14 se moviera con una velocidad constante a través de la unidad de formación en seco 11 y la formación de los productos de celulosa en el molde de formación 3 tendría lugar en etapas de proceso intermitentes.

La pieza en bruto de celulosa puede, como ejemplo, alimentarse intermitentemente al molde de formación a través de una unidad de alimentación 17 en forma de una disposición de zona de amortiguación, como se muestra en la figura 1. Un brazo de rodillo pivotante 26 con un rodillo elevador eleva y dobla la pieza en bruto de celulosa 1a en un arco suave con un movimiento servocontrolado sincronizado. De este modo, una longitud adecuada de la pieza en bruto de celulosa 1a se amortigua para permitir la alimentación incremental bajo demanda de la pieza en bruto de celulosa 1a en el molde de formación 3. Cuando se baja el brazo de rodillo pivotante 26, la pieza en bruto de celulosa amortiguada 1a puede alimentarse intermitentemente al molde de formación 3. El brazo de rodillo pivotante 26 se eleva y se baja de manera repetida para conseguir la amortiguación de la pieza en bruto de celulosa 1a, de manera que la pieza en bruto de celulosa 1a pueda alimentarse intermitentemente al molde de formación 3, a través de, por ejemplo, unos rodillos de alimentación 27 dispuestos después del brazo de rodillo pivotante 26.

Como alternativa, en lugar de usar una unidad de alimentación 17, el movimiento del molde de formación 3 puede ser alternativo y sincronizado con la alimentación de la pieza en bruto de celulosa 1a, permitiendo una velocidad constante de la pieza en bruto de celulosa 1a a través del proceso de producción. De este modo, el molde de formación se mueve con y en la dirección de alimentación de la pieza en bruto de celulosa durante el prensado del producto de celulosa.

Como se ha descrito anteriormente, el producto de celulosa se fabrica a partir de fibras de celulosa 12, y el producto de celulosa puede comprender al menos un 90 por ciento en peso de fibras de celulosa. Sería posible fabricar un producto de celulosa solamente a partir de fibras de celulosa, pero pueden aplicarse agentes de encolado u otros aditivos adecuados a las fibras de celulosa 12 para aumentar las propiedades hidrofóbicas, la resistencia mecánica y/u otras propiedades de la pieza en bruto de celulosa 1a. Los agentes de encolado o aditivos pueden aplicarse en la formación de la pieza en bruto de celulosa 1a, por ejemplo, en la unidad de separación 13. Otras sustancias adecuadas que pueden añadirse a las fibras de celulosa pueden ser, por ejemplo, diferentes formas de almidón, tal como almidón de patatas, cereales o maíz en forma de polvo, que puede añadirse a las fibras de celulosa 12 antes de formar el producto de celulosa en el molde de formación 3. Al añadir almidón, aumentará la resistencia del producto de celulosa final. Como ejemplo, el producto de celulosa puede comprender un 90-98 por ciento en peso de fibras de celulosa y un 2-10 por ciento en peso de otras sustancias, tales como el almidón, agentes de encolado y/u otros aditivos y sustancias adecuados. También puede ser posible tener una cantidad de fibras de celulosa inferior al 90 por ciento en peso si se usan otras sustancias adecuadas. Otras sustancias adecuadas que pueden añadirse a las fibras de celulosa son, por ejemplo, aditivos o agentes de encolado usados tradicionalmente en la formación en húmedo de productos de papel, fluoroquímicos, dímero de alquilceteno (AKD), anhídrido alquénil succínico (ASA), colofonia (encolado ácido), cera, lignina y vidrio soluble (silicato de sodio). Con el fin de garantizar que el producto de celulosa pueda reciclarse después de su uso, las sustancias añadidas pueden ser biodegradables o aptas para el reciclaje.

Como se ha descrito anteriormente en relación con la figura 1, el aparato de formación de productos de celulosa 18 comprende una unidad de formación en seco 11 para formar la pieza en bruto de celulosa 1a y un molde de formación 3 para formar el producto de celulosa. El aparato de formación de productos de celulosa 18 puede construirse como una unidad de producción continua para productos de celulosa como una sola unidad de producción, en la que los productos de celulosa se fabrican a partir de materia prima de celulosa. En primer lugar, la pieza en bruto de celulosa 1a se forma en la unidad de formación en seco 11 y, a continuación, se transforma en un producto de celulosa en el molde de formación 3, donde el producto de celulosa puede tener una forma plana o esencialmente no plana.

La unidad de formación en seco comprende la unidad de separación 13 para separar la celulosa en fibras de celulosa desprendidas 12, la caja de formación 23 y el alambre de formación 14 para las fibras de celulosa 12, y la unidad de compactación 15 para compactar las fibras de celulosa 12 para formar una pieza en bruto de celulosa 1a. Como se muestra en la figura 1, una unidad de calentamiento dispuesta por separado 19 calienta la pieza en bruto de celulosa 1a antes del prensado de la pieza en bruto de celulosa 1a en el molde de formación 3. Como alternativa, en cambio, el molde de formación 3 puede calentarse por la unidad de calentamiento 19, en la que un medio fluido calentado, un calentador eléctrico u otro medio de calentamiento adecuado se usa para calentar el molde de formación 3.

El agente de encolado, el aditivo u otras sustancias necesarias se aplican a las fibras de celulosa 12 mediante una unidad de aplicación 20. La unidad de aplicación puede tener, por ejemplo, la forma de una o más boquillas de pulverización o dispositivos similares, que añade los agentes de encolado u otras sustancias a las fibras de celulosa 12 en la unidad de formación en seco 11.

La unidad de alimentación 17 está dispuesta después de la unidad de formación en seco de manera que la pieza en bruto de celulosa 1a en forma de una banda de celulosa continua 16 pueda alimentarse intermitentemente al molde de formación 3 por la unidad de alimentación 17.

En lo sucesivo, se describirá adicionalmente la formación del producto de celulosa a partir de la pieza en bruto de celulosa 1a en el molde de formación 3. Los métodos de formación del producto de celulosa a partir de la pieza en bruto de celulosa 1a en el molde de formación 3 descritos a continuación pueden ser parte de un método de formación

de productos de celulosa continuo, y los diferentes tipos de moldes de formación 3 descritos pueden integrarse en el aparato de formación de productos de celulosa 18.

El molde de formación 3, que puede ser un dispositivo de compresión definido por fuerza, de acuerdo con una realización a modo de ejemplo de la presente divulgación, y actualmente no reivindicado, se describirá a continuación con referencia a las figuras 2a-b. En la figura 2a, una vista lateral esquemática del dispositivo de compresión o dispositivo de moldeo a presión, en forma de molde de formación 3 para fibras de celulosa usando calor, se muestra en un estado abierto. El dispositivo de compresión o molde de formación 3 puede construirse de manera que se aplique una presión isostática cuando se forma el producto de celulosa. La presión aplicada también puede ser no isostática, de manera que se apliquen diferentes niveles de presión en diferentes partes del molde de formación 3 cuando se forma el producto de celulosa.

El molde de formación 3 de esta realización de la presente divulgación usa una parte de molde de formación rígida 2a colocada debajo de una membrana multiuso 4. La membrana 4 constituye un sello para un medio o fluido a presión 5, tal como, por ejemplo, aceite hidráulico, contenido en una cámara de presión, que no se muestra en la figura. La membrana 4, también llamada diafragma, puede fabricarse preferentemente de caucho, silicona, elastómero o poliuretano.

Dispositivos de prensa similares se encuentran en industrias completamente diferentes como, por ejemplo, cuando se forman láminas de metal para aviones o se procesa polvo metálico en materiales homogéneos. Las prensas con fines convencionales normalmente usan presiones muy altas, tal como dentro del intervalo de 1000-2000 bares.

La pieza en bruto de celulosa 1a, compuesta principalmente por fibras de celulosa con algunos aditivos y agentes, se ha colocado, como se muestra en la figura 2a, en un espacio entre la membrana 4 y la parte de molde de formación rígida 2a, que en la figura 2a está dispuesta debajo de la membrana 4. La pieza en bruto de celulosa 1a también puede contener una cantidad de agua, que, por ejemplo, puede depender de la humedad de la atmósfera circundante.

Con el fin de formar el producto de celulosa, o una parte de un producto de celulosa, a partir de la pieza en bruto de celulosa 1a, la pieza en bruto de celulosa 1a, tiene que calentarse a una temperatura de formación T_1 , que puede estar en el intervalo de 100 °C a 200 °C. La parte de molde de formación 2a puede calentarse a una temperatura deseada T_2 de manera que el calor se transfiera a la pieza en bruto de celulosa 1a con el fin de lograr la temperatura de formación T_1 de la pieza en bruto de celulosa 1a. El molde de formación 3 puede, por ejemplo, precalentarse a una temperatura de 150-170 °C bombeando aceite calentado en los canales internos 7 de la parte de molde de formación 2a. Una forma alternativa de precalentar el molde de formación 3 es usar resistencias eléctricas integradas, no mostradas en la figura. La pieza en bruto de celulosa 1a también puede precalentarse, por ejemplo, usando rayos infrarrojos antes de la entrada de herramienta. El calentamiento del medio a presión 5 a una temperatura de medio a presión T_5 también puede ser una alternativa adecuada.

En la figura 2b, el aceite hidráulico usado como medio a presión 5 se ha presurizado a una presión de al menos 1 MPa, y la membrana 4 ha envuelto el molde de formación calentado 2a con el material comprimido 1b formando el producto de celulosa entre los mismos. Una presión adecuada P_1 al formar el producto de celulosa puede estar dentro del intervalo de 1-100 MPa. Aplicando una presión adecuada, se comprimen las fibras de celulosa. La presión aplicada puede ser uniforme o isostática con el fin de comprimir las fibras de celulosa uniformemente con independencia de su posición relativa en el molde de formación 2a y con independencia de la cantidad local real de fibras. En una realización alternativa, en cambio, la presión puede ser no isostática, de manera que se usan diferentes niveles de presión en diferentes partes del molde de formación 3 para formar el producto de celulosa. Esto puede usarse, por ejemplo, si se desean diferentes propiedades estructurales en diferentes partes del producto de celulosa.

El dispositivo de compresión puede comprender un dispositivo de control de fluido (no mostrado en las figuras) para el medio a presión 5, y puede ser un accionador que comprime el fluido o un dispositivo de control de flujo de fluido para permitir que el fluido presurizado entre, de manera controlada, en la cámara de presión que tiene la membrana flexible 4 como una parte de una pared de la misma. El aparato puede comprender el fluido, o el fluido puede ser aire tomado de la atmósfera circundante.

Los presentes inventores han descubierto que una presión P_1 de 4 MPa (40 bares) a una temperatura de 160 °C cuando se forma el producto de celulosa da una agregación de fibrillas en las fibras de celulosa que se compara con muchos termoplásticos después de 10 segundos de tiempo de mantenimiento.

Con el fin de reducir el tiempo de ciclo para la producción industrial de productos de celulosa a partir de material comprimido 1b, el enfriamiento de dicho material comprimido 1b puede realizarse, por ejemplo, bombeando aceite enfriado en los canales internos 7 dispuestos en la parte de molde de formación 2a o en la cámara de presión en donde la temperatura T_2 de la parte de molde de formación 2a y la temperatura de medio a presión T_5 pueden reducirse rápidamente después de que se haya completado la agregación de fibrillas en las fibras de celulosa.

El proceso y el dispositivo volverán a su estado abierto mostrado en la figura 2a bajando el medio a presión 5 a la presión atmosférica P_0 , en donde dicha membrana 4 se retraerá a su estado inicial más o menos plano y en donde el

producto de celulosa acabado puede expulsarse y cortarse libre de fibras de celulosa residuales comprimidas o sin comprimir no deseadas.

El espesor final t_1 del producto de celulosa puede variar ligeramente dependiendo de la cantidad local real de fibras de celulosa.

En una realización alternativa, puede usarse una parte de molde de formación rígida en lugar de la membrana flexible o plegable 4, lo que puede ser adecuado si se desean diferentes niveles de presión cuando se forma el producto de celulosa. El uso de una membrana flexible 4 puede proporcionar un método de compresión isostática que da como resultado un producto de celulosa homogéneo con alta resistencia y tiempo de ciclo de producción corto.

Haciendo referencia a las figuras 3a-b, que se refieren a realizaciones ilustrativas actualmente no reivindicadas, la membrana multiuso 4 en las figuras 2a-b se ha reemplazado por una membrana de un solo uso que comprende una barrera de película delgada 6 en donde dicha barrera de película 6 puede aplicarse previamente a la pieza en bruto de celulosa 1a, cuando se produjo la pieza en bruto de celulosa 1a, o en donde la barrera de película 6 se proporciona al dispositivo de compresión, por ejemplo, desde rollos, no mostrados en las figuras, y se aplica a la pieza en bruto de celulosa 1a durante la compresión isostática de la pieza en bruto de celulosa 1a.

Dicha barrera de película delgada 6 puede fabricarse de un material termoplástico como PET, biopolietileno o PLA, que tiene un espesor dentro del intervalo de 1-700 μm .

La figura 3a muestra esquemáticamente el método que comprende un dispositivo de compresión o molde de formación 3 en su estado abierto inicial, usando la barrera de película delgada 6 aplicada a las fibras de celulosa 1a, que comprende una parte de molde de formación negativa inferior 2b precalentada a la temperatura T_2 y un medio o fluido a presión 5, preferentemente gas o aire a presión atmosférica, contenido en la cámara de presión, que no se muestra en la figura.

La figura 3b muestra el mismo dispositivo y pieza en bruto de celulosa 1a que se muestran en la figura 3a en estado comprimido, en donde el medio a presión 5, preferentemente aire comprimido o un líquido no contaminante como el agua, se ha presurizado a la presión P_1 y en donde la barrera de película delgada 6 separa y sella el medio a presión del material comprimido 1b de la pieza en bruto de celulosa 1a y en donde el medio a presión 5 y la membrana 6 forman la misma presión que actúa sobre las fibras de celulosa a través de la superficie de formación calentada, con una temperatura T_2 , de dicha parte de molde de formación 2b.

Al mantener una presión específica a una temperatura específica durante un cierto período de tiempo X, la agregación de fibrillas en las fibras de celulosa creará un componente biocompuesto del material comprimido 1b con propiedades mecánicas cercanas a los termoplásticos. Si, como ejemplo, la presión P_1 es 4 MPa (40 bares), la temperatura de formación T_1 es 140 °C, la temperatura T_2 de la parte de molde de formación 2b es 160 °C y el período de tiempo X es 10 segundos, puede lograrse el componente biocompuesto del material comprimido 1b con propiedades mecánicas cercanas a los termoplásticos. El período de tiempo X puede, por ejemplo, oscilar entre 0,1 segundos y varios segundos, dependiendo de la temperatura de formación de la pieza en bruto de celulosa y la presión aplicada.

Eliminando el medio a presión 5 y bajando la presión a la presión atmosférica P_0 después del período de tiempo X, el producto de celulosa formado por el material comprimido 1b puede expulsarse y, si fuera necesario, cortarse en su forma final.

Una ventaja del método expuesto en las figuras 3a-b es que la barrera de película 6 también puede funcionar como una barrera frente a otros medios que quedan expuestos al componente durante el uso. Por ejemplo, si el producto de celulosa provisto de la barrera de película 6 es un cuenco de ensaladas para llevar, es deseable tener una barrera 6 para proteger las fibras de celulosa en el material comprimido 1b del contacto con las verduras y para disminuir las características higroscópicas del cuenco. Este método también podría usarse para producir botellas o recipientes para productos líquidos y, por lo tanto, el producto de celulosa puede ser adecuado para envasar diferentes tipos de líquidos o bebidas, incluyendo líquidos carbonatados.

Volviendo a las figuras 4a-d, de acuerdo con la invención, el molde de formación 3 comprende al menos dos superficies o partes de formación negativas que pueden abrirse y cerrarse 2a, 2b, que rodean una pieza en bruto de celulosa en forma de tubo 1a que comprende una barrera de película 6 en donde la capa exterior son fibras de celulosa sin comprimir y sus aditivos y la capa interior 6 es una membrana de un solo uso que comprende una barrera de película delgada 6. La pieza en bruto puede suministrarse preferentemente al dispositivo de compresión en rollos, no mostrados en la figura, en forma plana en donde la pieza en bruto tiene forma de tubo, no mostrada en la figura, que rodea una boquilla de medio a presión 8.

En la figura 4a, el molde de formación 3 con las superficies o partes de formación 2a, 2b se precientan a la temperatura de molde de formación T_2 , y se muestran esquemáticamente en la etapa inicial abierta del método de proceso de formación. La pieza en bruto de celulosa en forma de tubo 1a con la barrera de película 6 se suministra desde la parte superior que rodea la boquilla de medio a presión fija 8, lo que significa que la pieza en bruto de celulosa

en forma de tubo 1a con la barrera de película 6 se suministra en una dirección desde arriba a las superficies de formación 2a, 2b.

Al cerrar el molde de formación precalentado 3, se aplica una fuerza de cierre F_c , que es mayor que una fuerza de apertura creada por la presión P_1 aplicada por el medio a presión 9 al interior del molde de formación 3 por la boquilla de medio a presión 8, mostrada en la figura 4c. El estado cerrado del molde de formación 3 con las superficies de formación 2a, 2b se muestra esquemáticamente en las figuras 4 b-c. La fuerza de cierre F_c y el diseño de las superficies de formación 2a, 2b adyacentes a la parte superior y la parte inferior de la cavidad sellará el volumen interior de la pieza en bruto de celulosa 1a de la presión atmosférica exterior P_0 .

En una realización alternativa, no mostrada en las figuras, la pieza en bruto de celulosa 1a se puede cortar por los moldes de formación a partir del material residual cuando el molde de formación 3 está cerrado. Una o ambas partes de molde de formación puede(n) estar provista(s) de un dispositivo de corte, tal como, por ejemplo, un filo afilado, para cortar el producto de celulosa libre de fibras de celulosa comprimidas o sin comprimir residuales no deseadas en el mismo movimiento de prensado que cuando se forma el producto de celulosa en el molde de formación. Este dispositivo de corte puede diseñarse para ajustarse a un espesor específico del producto de celulosa. El dispositivo de corte puede cortar el borde del producto de celulosa formado en formas tanto bidimensionales como tridimensionales dependiendo de la forma deseada del producto de celulosa. El dispositivo de corte puede construirse de diferentes maneras para que sea eficiente para cortar el producto final, por ejemplo, una incisión estrecha dispuesta en una de las partes de molde en formación que interactúa con un filo saliente en la otra parte de molde de formación, o una disposición de filo en una de las partes de molde de formación que interactúa con una superficie de corte en la otra parte de molde de formación. Como alternativa, el dispositivo de corte puede disponerse como una cuchilla móvil integrada en el molde, que se mueve en una dirección relativa al movimiento de prensado.

Cualquier fibra de celulosa residual 12, no usada en el producto de celulosa, puede recogerse y devolverse a la unidad de separación 13 con fines de reciclaje.

La figura 4c muestra la fase de formación y agregación de fibrillas del método de la presente invención en donde dicho volumen interior de la pieza en bruto se ha llenado con el medio a presión 9 desde la boquilla de medio a presión 8 y presurizado a la presión P_1 en donde el medio a presión 9 y la membrana de un solo uso 6 forman la misma presión que actúa sobre las fibras de celulosa a través de la superficie de formación calentada de dichos moldes de formación 2a y 2b.

El proceso de llenado tiene lugar entre las etapas mostradas en las figuras 4b y 4c, y requiere unos canales de aire 10 para permitir que el aire fuera de la pieza en bruto de celulosa 1a con la barrera de película 6 en la cavidad del molde de formación 3 se drene durante el proceso de expansión de la pieza en bruto.

La figura 4d ilustra un producto de celulosa tridimensional en forma de un objeto hueco fabricado del material comprimido 1b y la barrera de película 6, por ejemplo, una botella para bebidas, formado por el método descrito en las figuras 4a-c lleno de dicho medio a presión 9, en donde la barrera de película 6 separa el medio a presión 9 de las fibras de celulosa comprimidas 1b.

De acuerdo con la presente divulgación, el medio a presión 9 puede estar constituido en esta realización por la bebida que se pretende introducir en el producto de celulosa, tal como, por ejemplo, leche, zumo, agua y bebidas carbonatadas.

La barrera de película 6 puede fabricarse preferentemente de un material termoplástico delgado como PET, biopolietileno o PLA, que tiene un espesor en el intervalo de 1-700 μm , en donde la barrera de película 6, aplicada convencionalmente en envases de papel para bebidas, también sella las fibras de celulosa 1b para que no entren en contacto con la bebida durante el almacenamiento y uso del producto de celulosa.

El tiempo de ciclo para la etapa de proceso mostrada en la figura 4c puede reducirse si la bebida se enfría a una temperatura T_9 , por ejemplo, en el intervalo de 1-20 $^{\circ}\text{C}$, y se llena rápido, preferentemente en menos de un segundo. Si el molde de formación 3 con las superficies de formación 2a, 2b se precalienta a una temperatura de molde T_2 , que, por ejemplo, es de 200 $^{\circ}\text{C}$ y la pieza en bruto se precalienta a una temperatura T_1 , de, por ejemplo, 140 $^{\circ}\text{C}$, la temperatura de medio a presión T_9 permitirá la liberación de la botella llena del molde de formación 3 en tiempos de ciclo de segundos o incluso menos.

Las figuras 5a-b muestran esquemáticamente otro principio de la presente divulgación, actualmente no reivindicado, en donde el dispositivo de compresión comprende al menos una parte de molde de formación positiva 2a, al menos una parte de molde de presión negativa 2b y una membrana preformada multiuso 4, en donde el medio a presión 5 se presuriza a la presión P_1 después de que las partes de molde 2a y 2b, que rodean la pieza en bruto de celulosa 1a, se hayan cerrado.

La etapa de formación final donde tiene lugar la agregación de fibrillas en las fibras de celulosa de la pieza en bruto de celulosa 1a se muestra en la figura 5b. La sección transversal ampliada mostrada en la figura 5b ilustra cómo el

medio a presión 5 penetra en el molde de formación 3 entre la parte de molde de presión negativa superior 2b y la membrana 4 donde en una presión P_1 , comprimirá uniformemente la pieza en bruto de celulosa 1a hacia la superficie de formación del molde de formación positivo inferior precalentado 2a. La penetración del medio a presión 5 puede facilitarse mediante muescas menores, no mostradas en la figura, en la superficie de la parte de molde de presión

negativa superior 2b que actúan como microcanales para el medio a presión 5.

La realización del dispositivo de compresión de acuerdo con las figuras 5a-b puede ser beneficiosa en comparación con el método expuesto en las figuras 2a-b, donde se prefieren tiempos de ciclo más cortos. La membrana 4 no tiene que deformarse en la misma medida en la realización mostrada en las figuras 5a-b.

Los ejemplos descritos anteriormente del método de compresión, con referencia a las figuras 2-5, comprenden una membrana flexible 4, que puede usarse para proporcionar una presión isostática. Debe entenderse que la transformación de objetos tridimensionales en compuestos totalmente de celulosa usando moldeado por compresión en caliente de fibras de celulosa, tal como la pulpa de madera procesada solo con agua, puede obtenerse usando herramientas convencionales mientras aún se logra una presión isostática.

Haciendo referencia a las figuras 6a-c, que se refieren a una realización ilustrativa actualmente no reivindicada, una parte de molde de presión no flexible negativa precalentada superior 2b y una parte de molde de formación no flexible positiva precalentada inferior 2a, rodean la pieza en bruto de celulosa 1a en donde el espesor de cavidad $t(P)$ entre la parte de molde de formación no flexible positiva precalentada inferior 2a y la parte de molde de presión no flexible negativa precalentada superior 2b se desvía del espesor uniforme nominal donde la desviación se establece teórica y/o prácticamente para crear una presión isostática P_1 en cada parte de la pieza en bruto de celulosa 1a hacia las partes de molde 2a y 2b cuando las partes de molde se presionan juntas con la fuerza F .

La figura 6a muestra esquemáticamente la realización en un estado abierto inicial con la pieza en bruto de celulosa en un estado plano alimentada a las partes de molde en una banda continua 1a. La figura 6c muestra esquemáticamente la realización en un estado cerrado con la pieza en bruto de celulosa 1a en un estado no plano comprimido. La figura 6b muestra esquemáticamente la realización en un estado entre abierto y cerrado, en un estado no plano sin comprimir.

Las figuras 6a-c muestran un ejemplo de un dispositivo de compresión para un cuenco hueco, donde la parte de molde de formación positiva 2a tiene una forma nominal, preferida, y donde la parte de molde de presión negativa 2b tiene una forma compensada con el fin de obtener la misma presión P_1 .

Como se muestra en la figura 6b, la pieza en bruto se deforma por las dos partes de molde 2a, 2b en donde el espesor t de la pieza en bruto de celulosa 1a varía debido a la fricción y la restricción de deformación en la pieza en bruto de celulosa 1a. En este ejemplo esquemático, que puede alterarse de muchas maneras, la pieza en bruto de celulosa 1a terminará con un espesor mínimo $t_{\min}$, adyacente a la entrada de cavidad del molde de presión 2b y un espesor máximo $t_{\max}$ en la parte superior del molde de formación 2a.

El espesor de cavidad, s , entre las dos partes de molde 2a, 2b, se compensa, por lo tanto, de modo que el espesor de cavidad más estrecho $s_{\min}$ está situado junto a donde la pieza en bruto de celulosa es más delgada $t_{\min}$ y el espesor de cavidad más ancho $s_{\max}$ está situado junto a donde la pieza en bruto de celulosa sin comprimir 1a es más gruesa $t_{\max}$, por medio del molde de presión negativa 2b, presionando la pieza en bruto de celulosa 1a contra el molde positivo de formación 2a con una presión de formación sustancialmente igual P_1 actuando sobre la pieza en bruto de celulosa 1a a través de la superficie de formación.

Además, la relación entre el espesor de la pieza en bruto de celulosa, t , y el espesor de cavidad, s , y la forma de cavidad final, también está relacionada con la generación de presión geométrica de la cavidad. La fuerza F determina la presión P_1 en la parte superior de la parte de molde de formación positiva 2a mientras que la convexidad, espesor y ángulo de la cavidad adyacente a la cavidad más estrecha, espesor $s_{\min}$, determina la presión final P_1 .

Los inventores de la presente invención han descubierto que la forma final de la cavidad es un algoritmo complejo $t(P)$ con el fin de obtener una presión sustancialmente isostática P_1 donde se requieren pruebas tanto matemáticas, preferentemente análisis FEM, como empíricas, preferentemente ensayo y error, para obtener la misma presión en todo el componente.

De acuerdo con otra realización de la presente divulgación, sin membrana flexible, la cavidad compensada geométricamente por presión en las figuras 6a-c puede sustituirse por una compensación de espesor de la pieza en bruto de celulosa.

Las figuras 7a-b, que se refieren a una realización ilustrativa actualmente no reivindicada, muestran esquemáticamente una parte de molde de formación negativa de presión no compensada tradicional 2b y una parte de molde de formación positiva no compensada 2a, con un espesor de cavidad igual y nominal preferido, t , en donde la pieza en bruto tiene un espesor compensado por presión entre $t_{\min}$ - $t_{\max}$ establecido con la misma teoría y de la misma manera que se describe para la realización expuesta en relación con las figuras 6a-c.

La preferencia por el método de crear presión isostática sin membrana flexible, presentado en relación con las figuras 6a-c y 7a-b, se relaciona con un tiempo de ciclo más corto y un menor coste para el dispositivo de compresión. Sin embargo, el esfuerzo de desarrollo podría ser más costoso para el método que usa moldes rígidos.

5 La ventaja de usar el método descrito en relación con las figuras 7a-b sobre el método descrito en relación con las figuras 6a-c es el espesor uniforme logrado t_1 del producto de celulosa final. Sin embargo, las piezas en bruto podrían ser más costosas de producir en el método descrito en las figuras 7a-b.

10 Como alternativa, el molde de formación 3 también puede disponerse con una membrana construida como una estructura de membrana flexible maciza. En las figuras 8a-c se muestra esquemáticamente un molde de formación alternativo 3 con una parte de molde de formación negativa 2b y una parte de molde de formación positiva 2a. La parte de molde de formación positiva 2a aplica una presión de formación, F, sobre una membrana flexible maciza 4, que aplica una presión isostática sobre la pieza en bruto de celulosa 1a cuando se forma el producto de celulosa. Por
15 membrana flexible maciza se entiende una estructura flexible, que tiene una capacidad similar para aplicar la presión isostática a la pieza en bruto de celulosa 1a, como las estructuras de membrana descritas en las realizaciones anteriores, pero con una zona de deformación elástica más grande en comparación con estructuras de membrana más delgadas. La membrana flexible maciza 4 puede construirse con una estructura de membrana gruesa o incluso fabricarse con un cuerpo homogéneo de un material flexible. El material flexible puede tener propiedades que harán
20 que el material flote entre las partes de molde de formación cuando se aplica presión al cuerpo. En la realización mostrada en las figuras 8a-c, la membrana flexible maciza 4 está construida a partir de un cuerpo homogéneo de un material flexible.

En una realización alternativa, la membrana flexible maciza 4 puede tener un espesor variado, donde la membrana flexible maciza, por ejemplo, se conforma o moldea en una estructura con un espesor variado. Las áreas más delgadas y más gruesas de la membrana flexible maciza con un espesor variado pueden compensar las áreas en las partes de
25 molde de formación que necesitan una deformación más pequeña o más grande de la membrana con el fin de igualar o nivelar la presión a la que está sometida la pieza en bruto de celulosa 1a. Mediante el uso de una estructura de membrana flexible maciza, el molde de formación puede hacerse más económico y de construcción más sencilla.

30 La membrana flexible maciza 4 se construye de modo que cuando la presión, F, se aplica desde las partes de molde de formación, la membrana flexible maciza 4 se deforma con el fin de proporcionar la presión isostática. La membrana flexible maciza 4 puede fabricarse de un material con propiedades adecuadas, tal como, por ejemplo, caucho, látex, poliuretano o silicona. También pueden usarse otros materiales o combinaciones de materiales adecuados con
35 propiedades elastoméricas. Debido a las propiedades flexibles de la membrana flexible maciza 4, la membrana flexible maciza 4 aplica una presión isostática a la pieza en bruto de celulosa 1a.

En la figura 8a, la pieza en bruto de celulosa 1a se coloca entre la parte de molde de formación negativa 2b y la membrana flexible maciza 4. La parte de molde de formación positiva 2a empuja la membrana flexible maciza 4 y la
40 pieza en bruto de celulosa 1a hacia la parte de molde de formación negativa 2b cuando la presión de formación, F, se aplica a las partes de molde de formación, como se muestra en las figuras 8a-b, que se refieren a una realización ilustrativa actualmente no reivindicada. Al formar el producto de celulosa, la parte de molde de formación negativa 2b se calienta a una temperatura de parte de molde de formación T_2 y, durante el proceso de formación, la pieza en bruto de celulosa 1a se calienta a una temperatura de formación T_1 , véanse las figuras 8a-c.

45 En las figuras 9a-c, que se refieren a una realización ilustrativa actualmente no reivindicada, se muestra esquemáticamente otro molde de formación alternativo 3 con una parte de molde de formación negativa 2b y una parte de molde de formación positiva 2a. La parte de molde de formación negativa 2b aplica una presión de formación, F, sobre una membrana flexible maciza 4, que aplica una presión isostática sobre la pieza en bruto de celulosa 1a cuando
50 se forma el producto de celulosa. La membrana flexible maciza 4 se construye de modo que cuando la presión, F, se aplica desde las partes de molde de formación, la membrana flexible maciza 4 se deforma con el fin de proporcionar la presión isostática. La membrana flexible maciza 4 puede ser de la misma construcción que la descrita anteriormente en relación con la realización mostrada en las figuras 8a-c. En la realización mostrada en las figuras 9a-c, la membrana flexible maciza 4 tiene un espesor variado para adaptarse a la forma de la parte de molde de formación positiva 2a.
55 Debido a las propiedades flexibles de la membrana flexible maciza 4, la membrana flexible maciza 4 aplica una presión isostática a la pieza en bruto de celulosa 1a.

En la figura 9a, la pieza en bruto de celulosa 1a se coloca entre la parte de molde de formación positiva 2a y la membrana flexible maciza 4. La parte de molde de formación positiva 2a empuja la pieza en bruto de celulosa 1a hacia
60 la parte de molde de formación negativa 2b hacia la membrana flexible maciza 4 cuando la presión de formación, F, se aplica a las partes de molde de formación, como se muestra en las figuras 9a-b. Al formar el producto de celulosa, la parte de molde de formación positiva 2a se calienta a una temperatura de parte de molde de formación T_2 y, durante el proceso de formación, la pieza en bruto de celulosa 1a se calienta a una temperatura de formación T_1 , véanse las figuras 9a-c.

65 En las reivindicaciones, la expresión "que comprende/comprendiendo" no excluye otros elementos o etapas y los

artículos indefinidos "un" o "una" no excluyen una pluralidad. El mero hecho de que ciertas medidas se mencionen en reivindicaciones dependientes diferentes entre sí no indica que no pueda usarse de manera ventajosa una combinación de estas medidas.

- 5 Se apreciará que la descripción anterior es meramente de naturaleza ejemplar y no pretende limitar la presente divulgación, su aplicación o usos. Aunque se han descrito ejemplos específicos en la memoria descriptiva e ilustrado en los dibujos, los expertos en la materia entenderán que pueden realizarse diversos cambios sin alejarse del alcance de la presente divulgación, tal como se define en las reivindicaciones. Asimismo, pueden realizarse modificaciones para adaptar una situación o material específico a las enseñanzas de la presente divulgación sin alejarse del alcance esencial de la misma. Por lo tanto, se pretende que la presente divulgación no se limite a los ejemplos específicos ilustrados por los dibujos y descritos en la memoria descriptiva como el mejor modo actualmente contemplado para llevar a cabo las enseñanzas de la presente divulgación, sino que el alcance de la presente divulgación incluirá cualquier realización que esté dentro de la descripción anterior y de las reivindicaciones adjuntas. Los signos de referencia mencionados en las reivindicaciones no deben verse como una limitación del alcance de la materia protegida por las reivindicaciones, y su única función es facilitar la comprensión de las reivindicaciones.

Símbolos de referencia

- 1a: pieza en bruto de celulosa
- 1b: material comprimido
- 2a-b: partes de molde de formación
- 3: molde de formación
- 4: membrana
- 5: medio a presión
- 6: barrera de película
- 7: canales internos
- 8: boquilla de medio a presión
- 9: medio a presión
- 10: canales de aire
- 11: unidad de formación en seco
- 12: fibras de celulosa
- 13: unidad de separación
- 14: alambre de formación
- 15: unidad de compactación
- 16: banda de celulosa continua
- 17: unidad de alimentación
- 18: aparato de formación de productos de celulosa
- 19: unidad de calentamiento
- 20: unidad de aplicación
- 21: rodillo
- 22: ventilador centrífugo
- 23: caja de formación
- 24: caja de vacío
- 25: rodillos de separación de fibras
- 26: brazo de rodillo pivotante
- 27: rodillos de alimentación

REIVINDICACIONES

1. Un método para fabricar un producto de celulosa que tiene una forma no plana, que comprende las etapas de:

- 5 formar en seco una pieza en bruto de celulosa (1a) en una unidad de formación en seco (11);
 disponer la pieza en bruto de celulosa (1a) en un molde de formación (3) que comprende al menos dos superficies o partes de formación negativas (2a, 2b) que se pueden abrir y cerrar, en donde la pieza en bruto de celulosa tiene forma de tubo, en donde su capa exterior (1a) son fibras de celulosa no comprimidas y su capa interior (6) es una membrana de un solo uso que comprende una barrera de película delgada (6), en donde la membrana de un solo uso (6) constituye un sello del volumen interno de la pieza en bruto de celulosa en forma de tubo, para un medio o fluido a presión (5, 9);
 10 calentar la pieza en bruto de celulosa (1a) hasta una temperatura de formación en el intervalo de 100 °C a 200 °C;
 y
 prensar la pieza en bruto de celulosa (1a) en el molde de formación (3) con una presión de formación de al menos 1 MPa mediante del medio o fluido de presión (5, 9).

2. Un método de acuerdo con la reivindicación 1, en donde la pieza en bruto de celulosa (1a) se transforma en un producto de celulosa en forma de una botella hueca.

20 3. Un método de acuerdo con la reivindicación 1 o 2, en donde la presión de formación está en el intervalo de 1 MPa a 100 MPa.

4. Un método de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones anteriores, en donde el molde de formación (3) se calienta antes de prensar la pieza en bruto de celulosa (1a).

25 5. Un método de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones anteriores, en donde la unidad de formación en seco (11) comprende una unidad de separación (13), un alambre de formación (14) y una unidad de compactación (15), comprendiendo el método además las etapas de:

30 separar la celulosa en fibras de celulosa desprendidas (12) en la unidad de separación (13);
 disponer las fibras de celulosa (12) sobre el alambre de formación (14) depositando por aire las fibras de celulosa sobre el alambre de formación para formar la pieza en bruto de celulosa; y
 compactar las fibras de celulosa (12) en la unidad de compactación (15) para formar la pieza en bruto de celulosa (1a).

35 6. Un aparato de formación de productos de celulosa (18) para fabricar un producto de celulosa que tiene una forma no plana, comprendiendo el aparato de formación de productos de celulosa (18):

una unidad de formación en seco (11) para formar una pieza en bruto de celulosa (1a);
 40 un molde de formación (3) que comprende al menos dos superficies o partes de formación negativas (2a, 2b) que se pueden abrir y cerrar; en donde la pieza en bruto de celulosa tiene forma de tubo, en donde su capa exterior (1a) son fibras de celulosa no comprimidas y su capa interior (6) es una membrana de un solo uso que comprende una barrera de película delgada (6), en donde la membrana de un solo uso (6) constituye un sello del volumen interno de la pieza en bruto de celulosa con forma de tubo, para que un medio o fluido a presión (5, 9) forme el producto de celulosa, en donde el aparato de formación de productos de celulosa (18) comprende un dispositivo de control de fluido para el medio o fluido a presión (5, 9) que es un actuador configurado para comprimir el fluido o un dispositivo de control de flujo de fluido configurado para controlar y permitir que el fluido presurizado entre en la cámara de presión que tiene la membrana de un solo uso (6) como una parte de una pared de la misma.

50 7. Un aparato de formación de productos de celulosa (18) de acuerdo con la reivindicación 6, en donde el aparato comprende el fluido, o el fluido puede ser aire tomado de la atmósfera circundante.

8. Un aparato de formación de productos de celulosa (18) de acuerdo con la reivindicación 6 o 7, en donde la unidad de formación en seco (11) comprende:

55 una unidad de separación (13) configurada para separar la celulosa en fibras de celulosa desprendidas (12);
 un alambre de formación (14) sobre el que las fibras de celulosa (12) se depositan por aire para formar la pieza en bruto de celulosa (1a); y
 una unidad de compactación (15) para compactar las fibras de celulosa (12) para formar la pieza en bruto de celulosa (1a).

9. Un aparato de formación de productos de celulosa (18) de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 6 a 8, en donde el molde de formación (3) se calienta mediante una unidad de calentamiento (19).

65 10. Un aparato de formación de productos de celulosa (18) de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 6 a 9, que comprende una unidad de aplicación (20) configurada para aplicar agentes de encolado u otras sustancias a las

fibras de celulosa (12).

5 11. Un aparato de formación de productos de celulosa (18) de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 6 a 10, en donde la unidad de formación en seco (11) está configurada para formar la pieza en bruto de celulosa (1a) como una banda continua de celulosa (16).

10 12. Un aparato de formación de productos de celulosa (18) de acuerdo con la reivindicación 11, que comprende una unidad de alimentación (17) configurada para alimentar la banda continua de celulosa (16) intermitentemente al molde de formación (3).

13. Un aparato de formación de productos de celulosa (18) de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 6 a 12, en donde el molde de formación (3) está configurado para convertir la pieza en bruto de celulosa (1a) en un producto de celulosa en forma de una botella hueca.

15 14. Un producto de celulosa que es una botella hueca con fibras de celulosa depositadas por aire comprimidas.

15. Un producto de celulosa de acuerdo con la reivindicación 14, en donde el producto de celulosa comprende al menos el 90 por ciento en peso de fibras de celulosa.

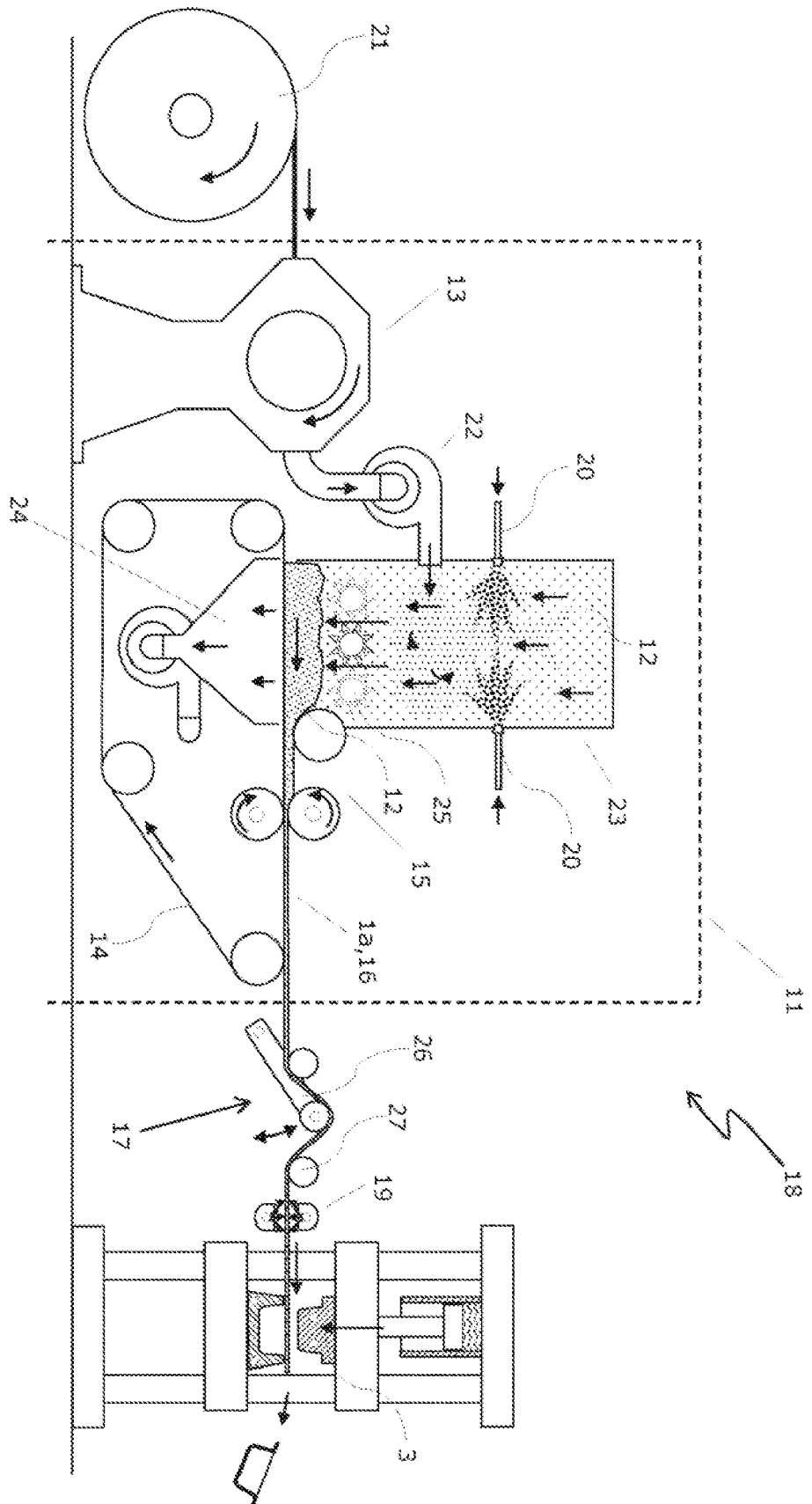


Fig. 1

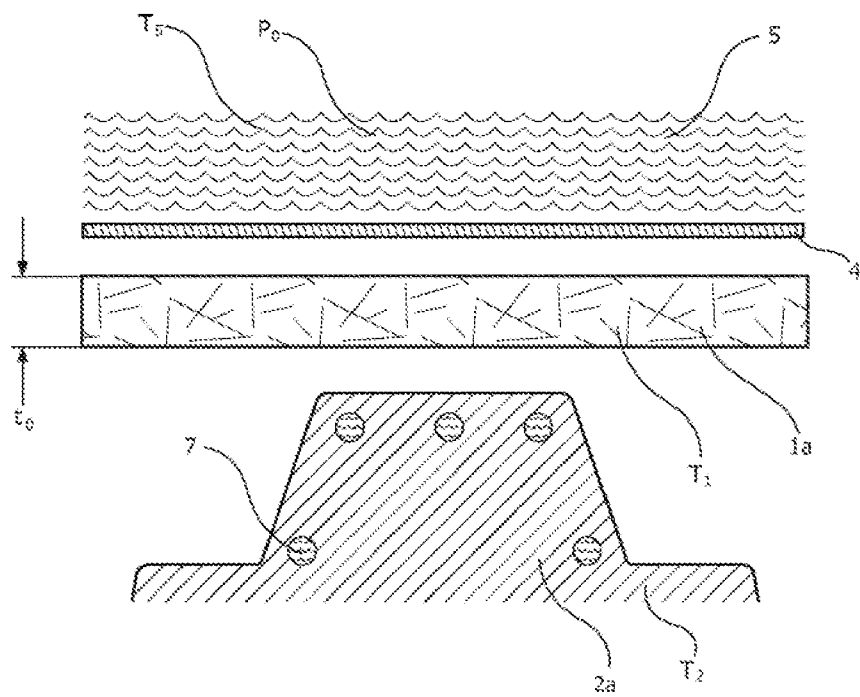


Fig. 2a

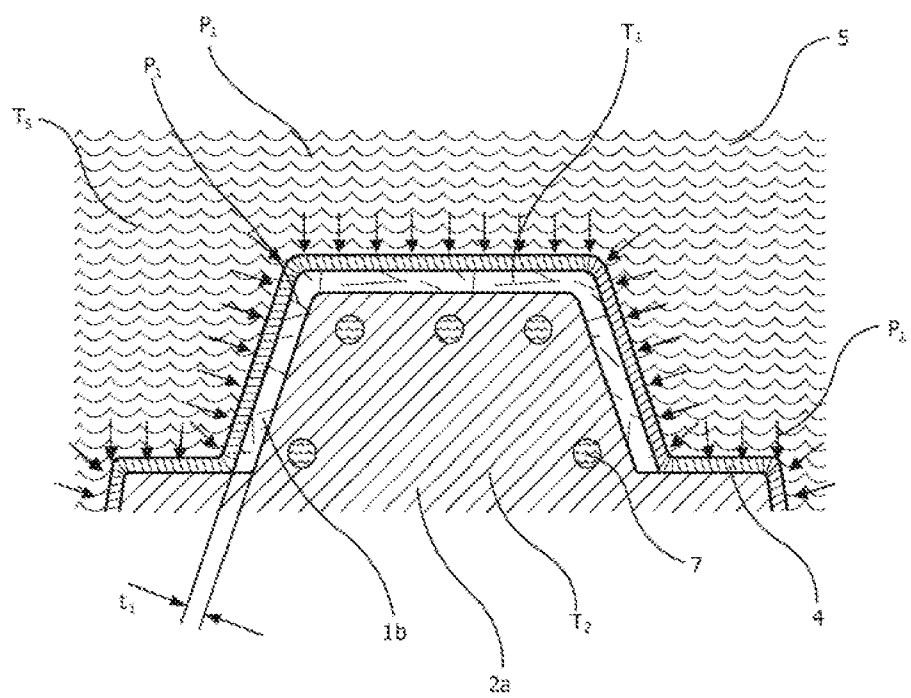


Fig. 2b

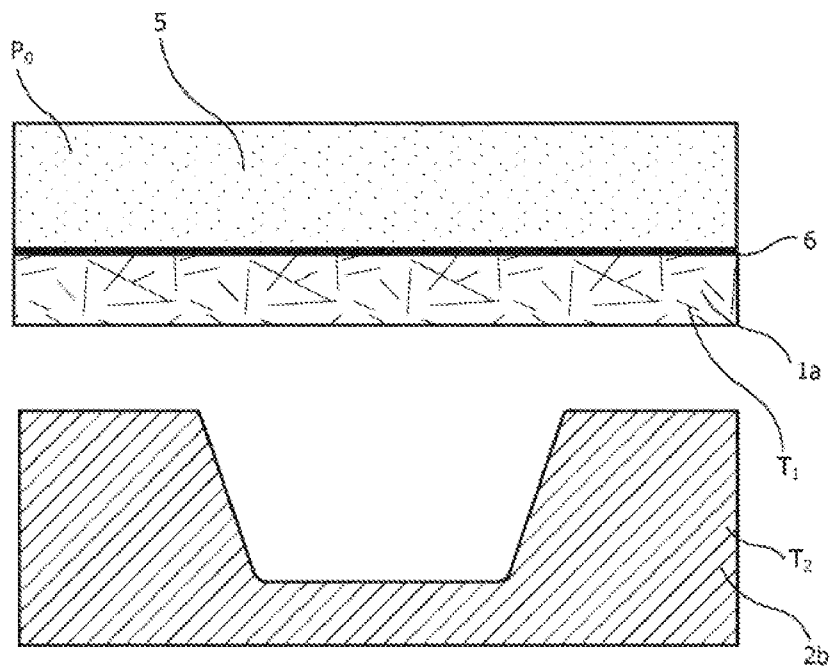


Fig. 3a

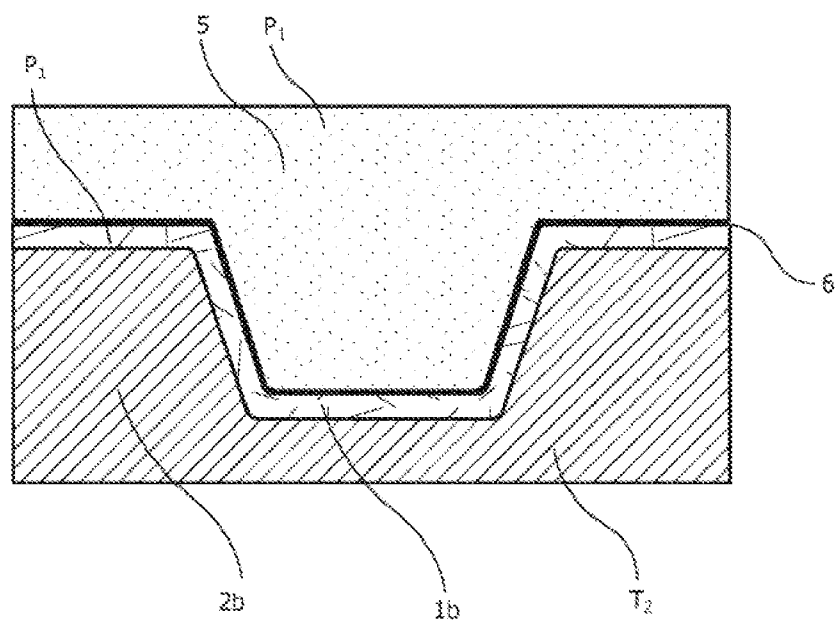


Fig. 3b

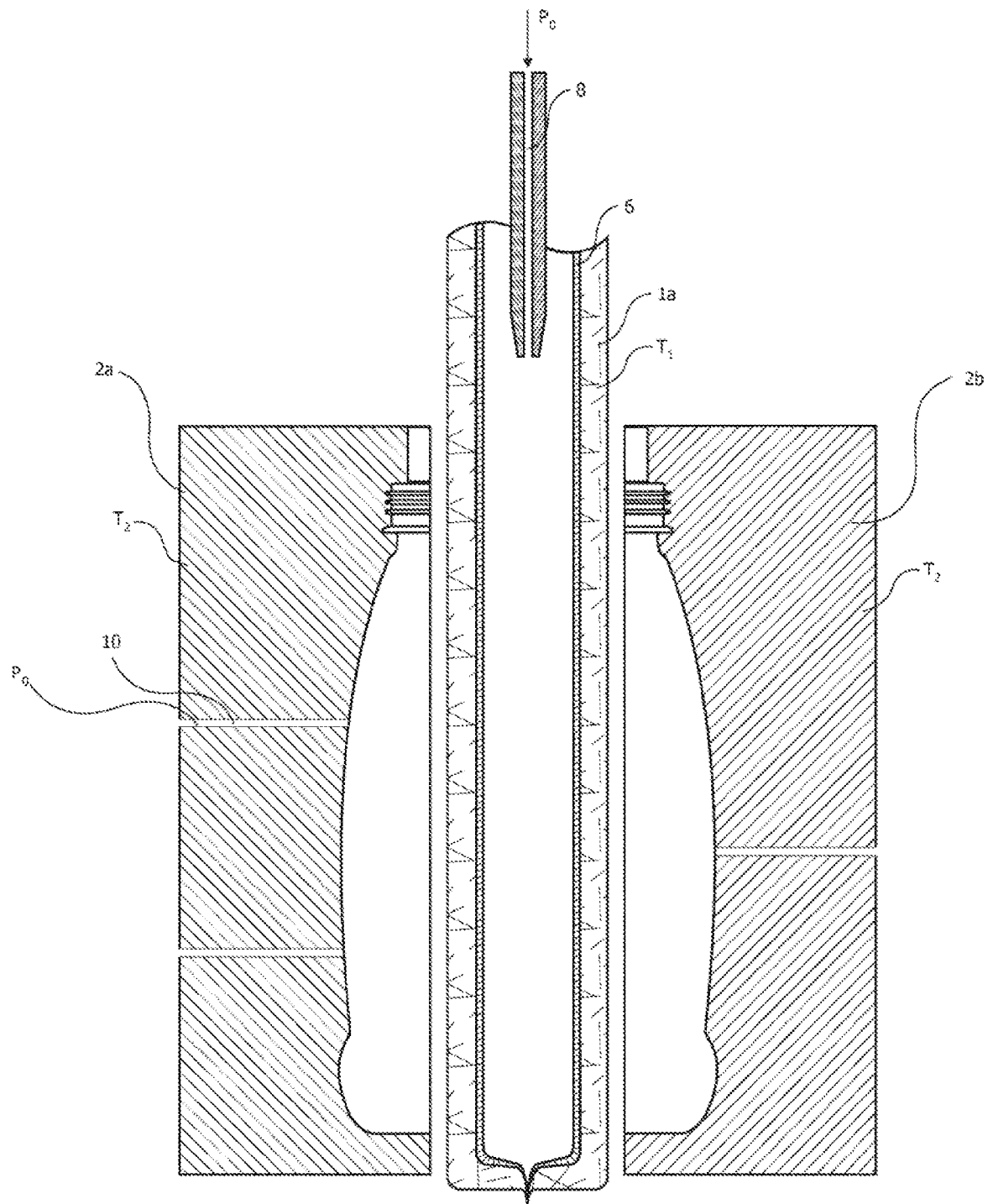


Fig. 4a

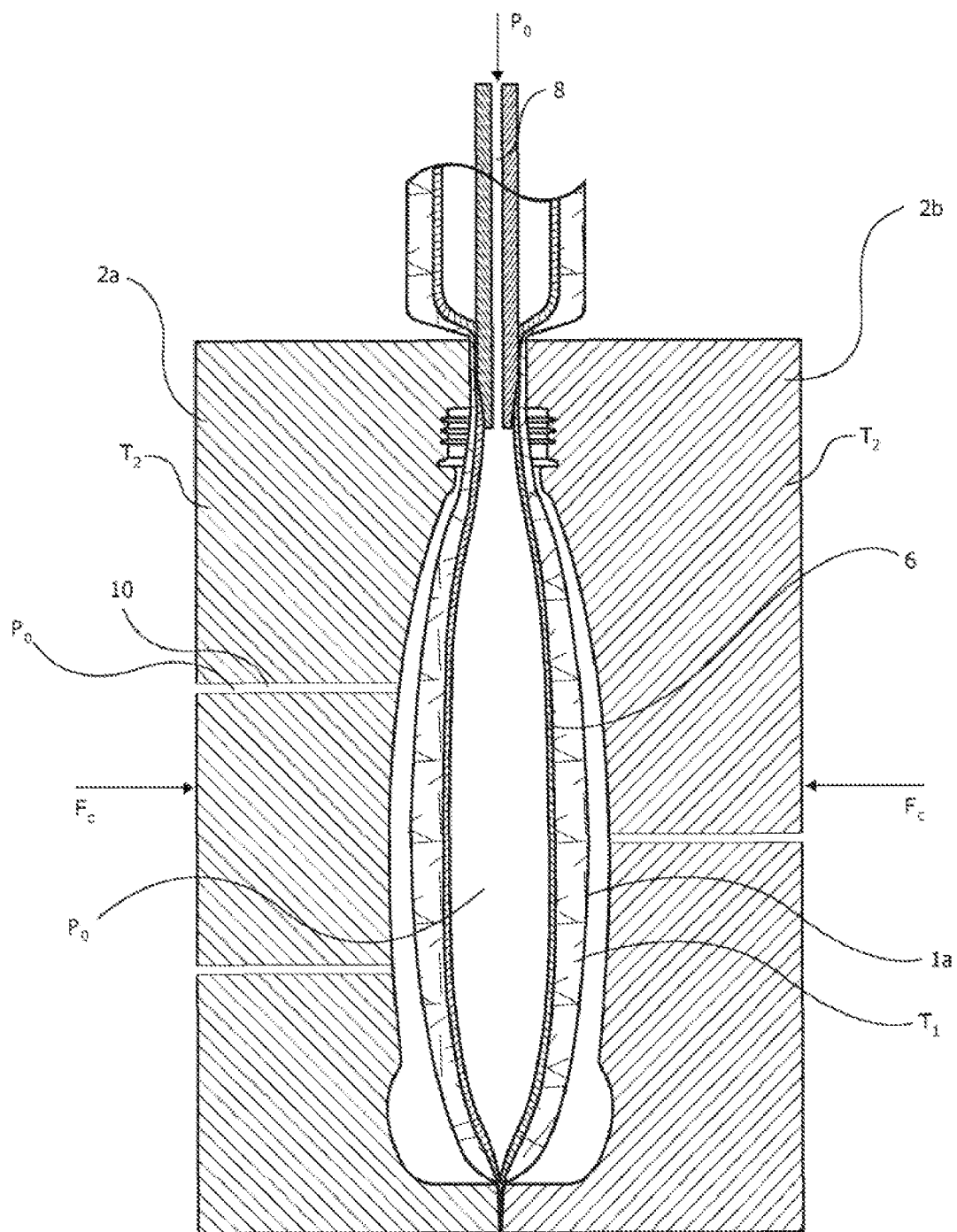


Fig. 4b

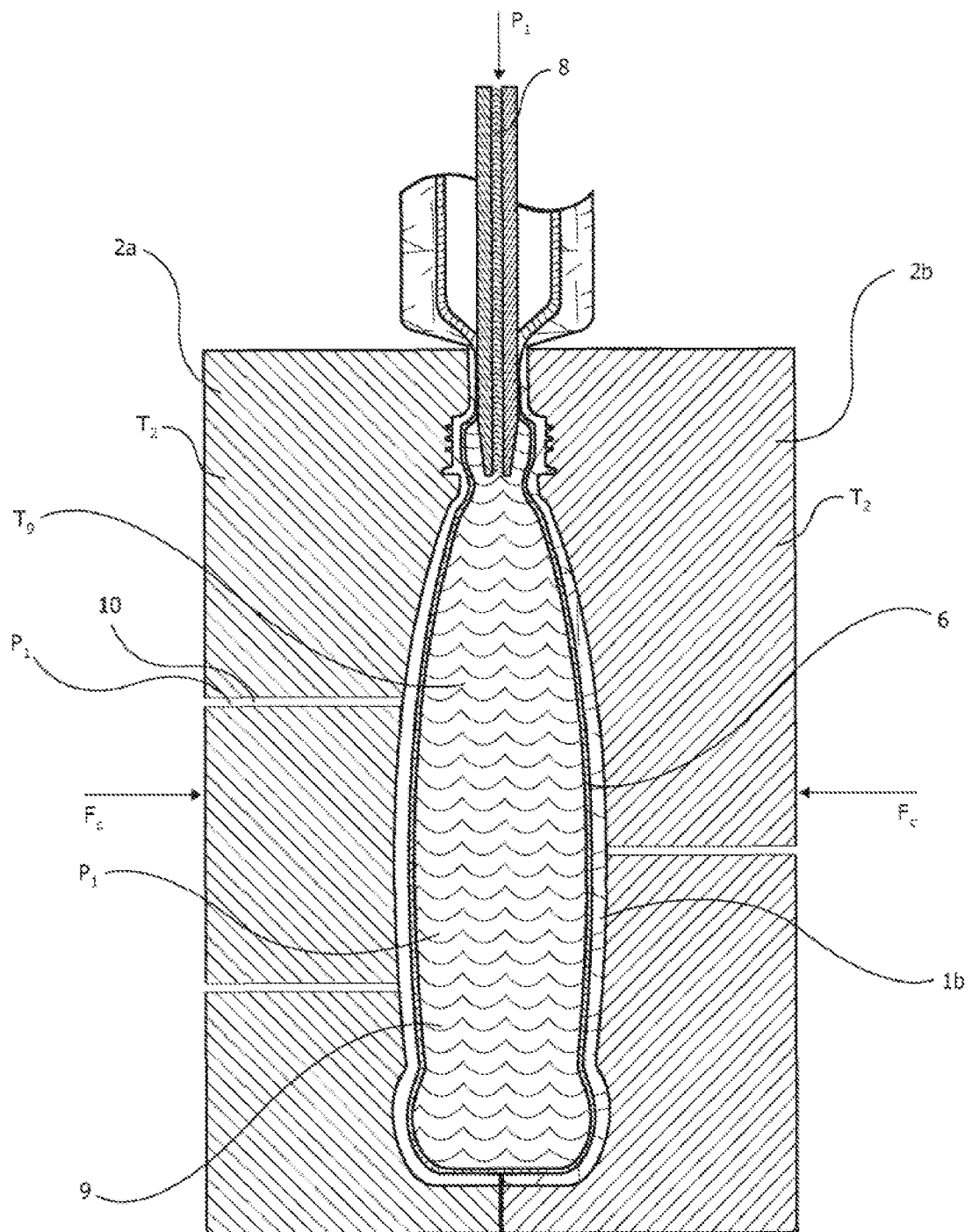


Fig. 4c

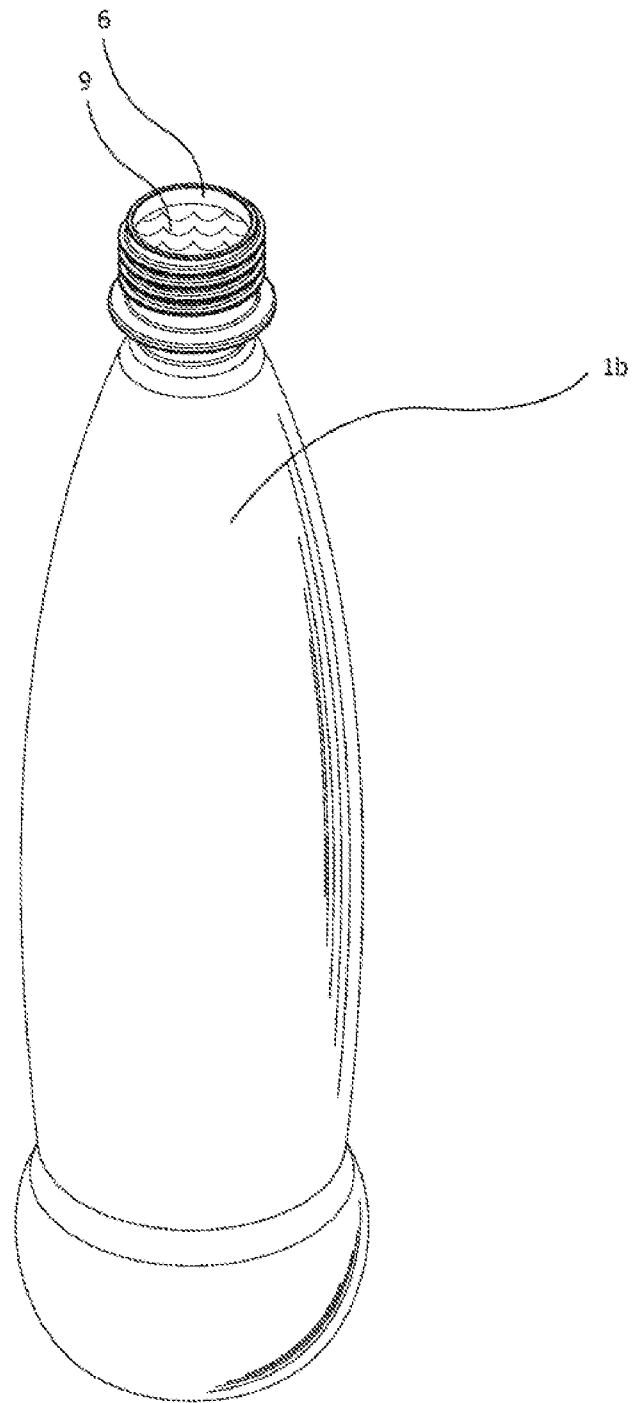


Fig. 4d

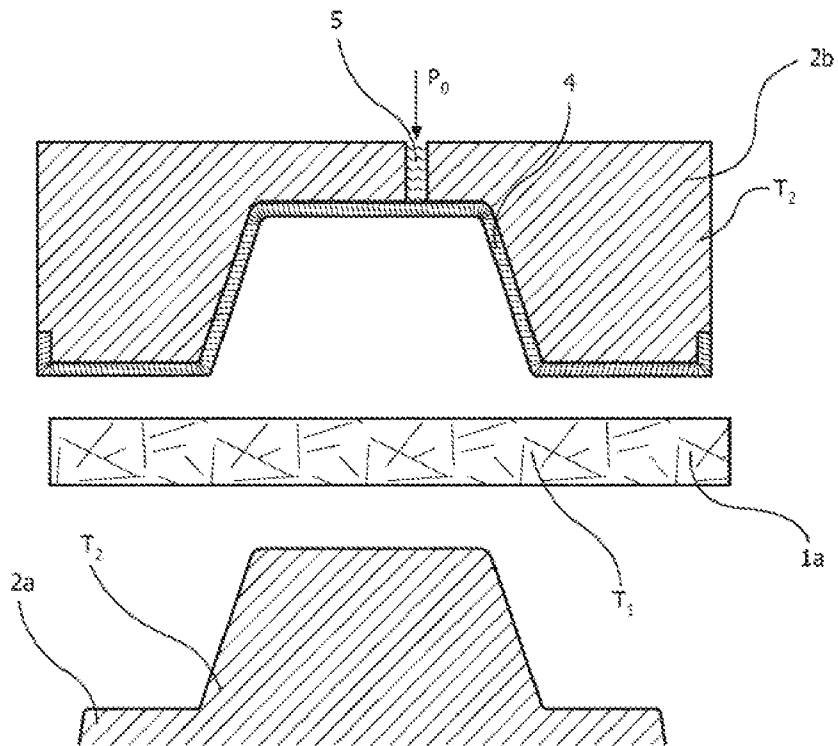


Fig. 5a

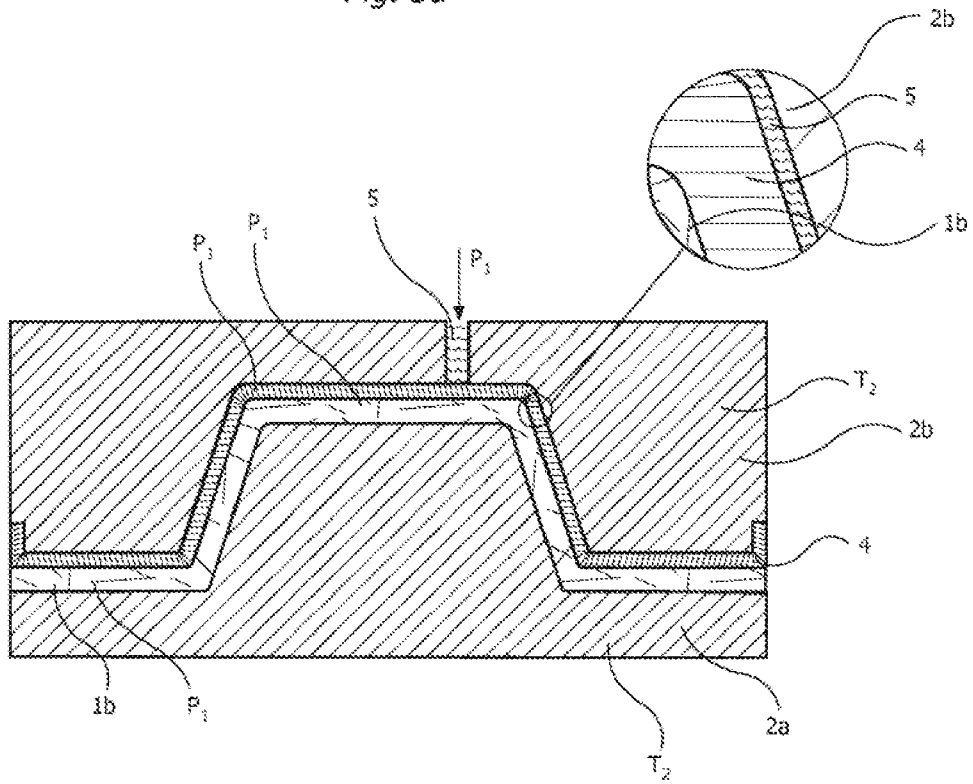


Fig. 5b

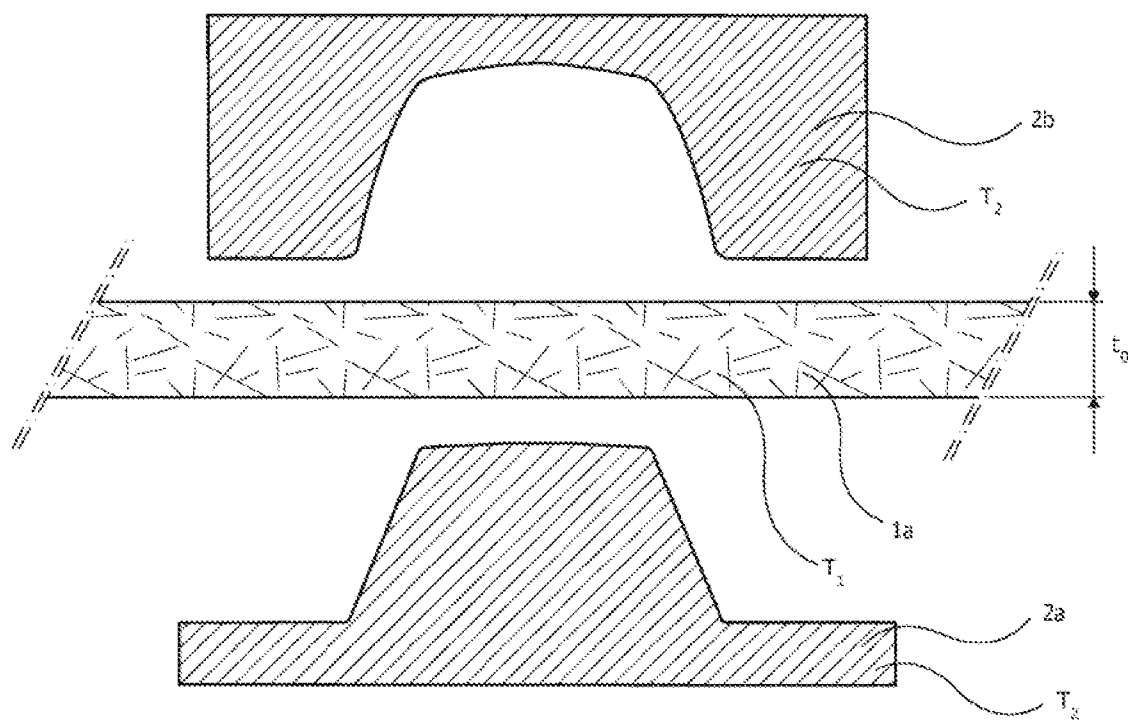


Fig. 6a

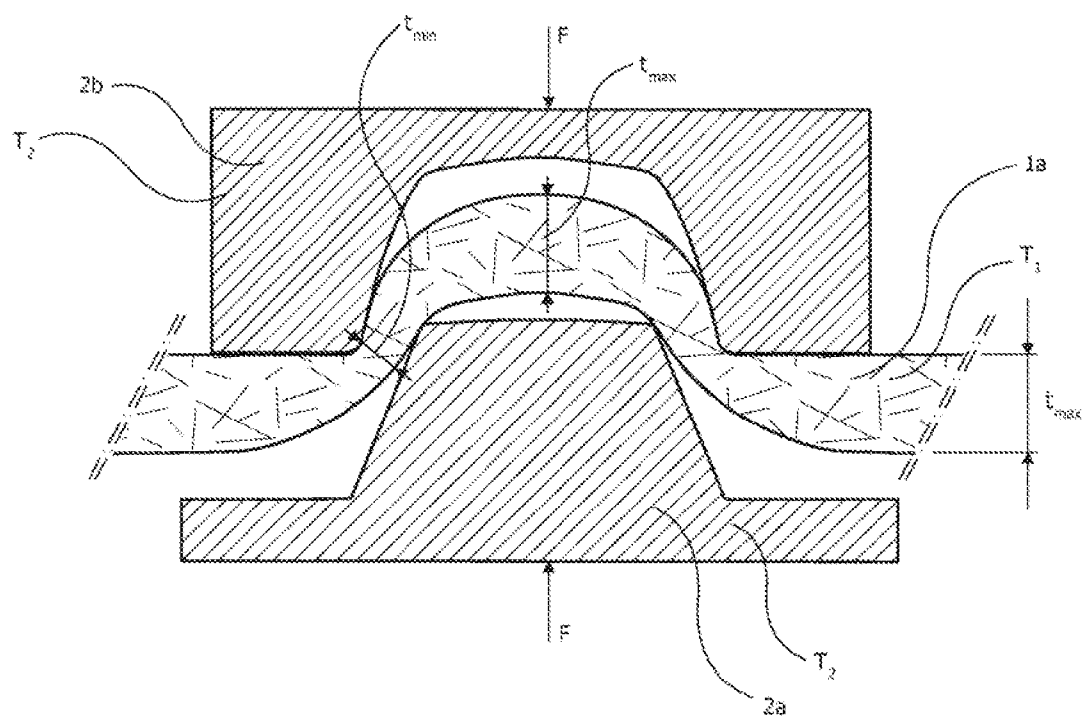


Fig. 6b

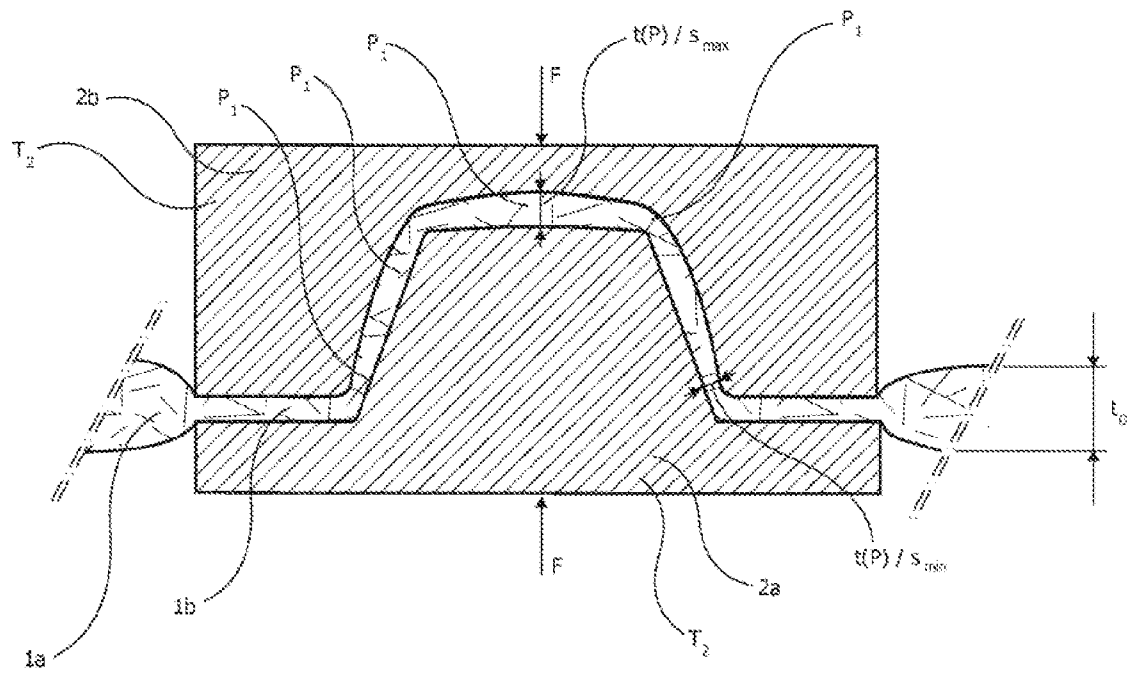


Fig. 6c

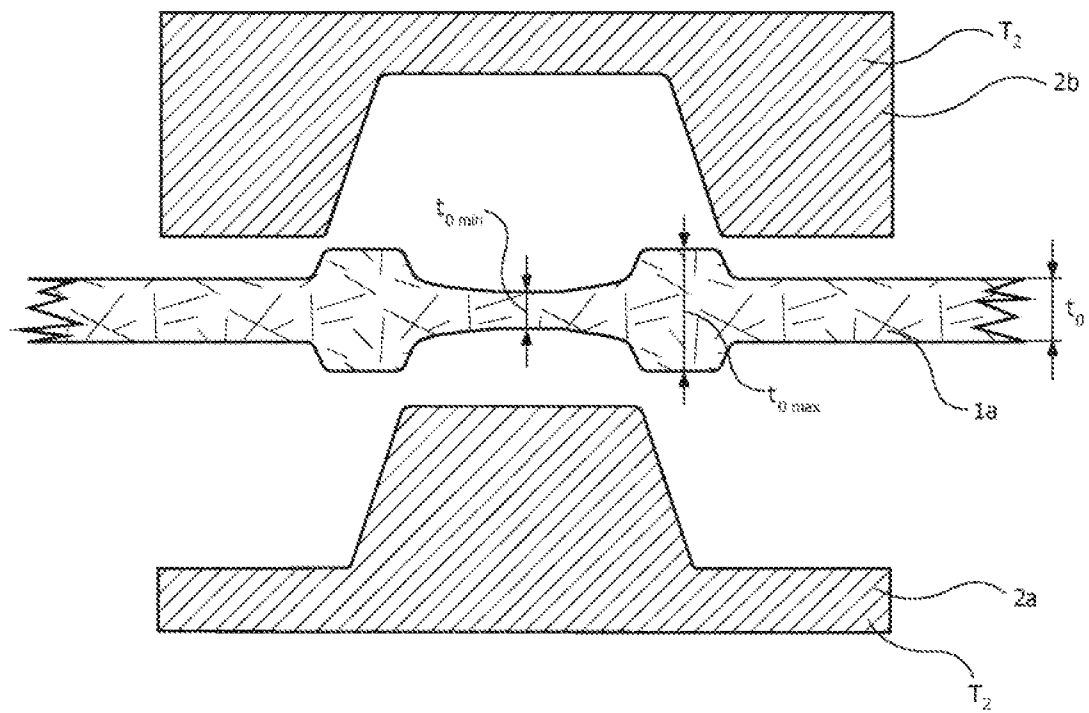


Fig. 7a

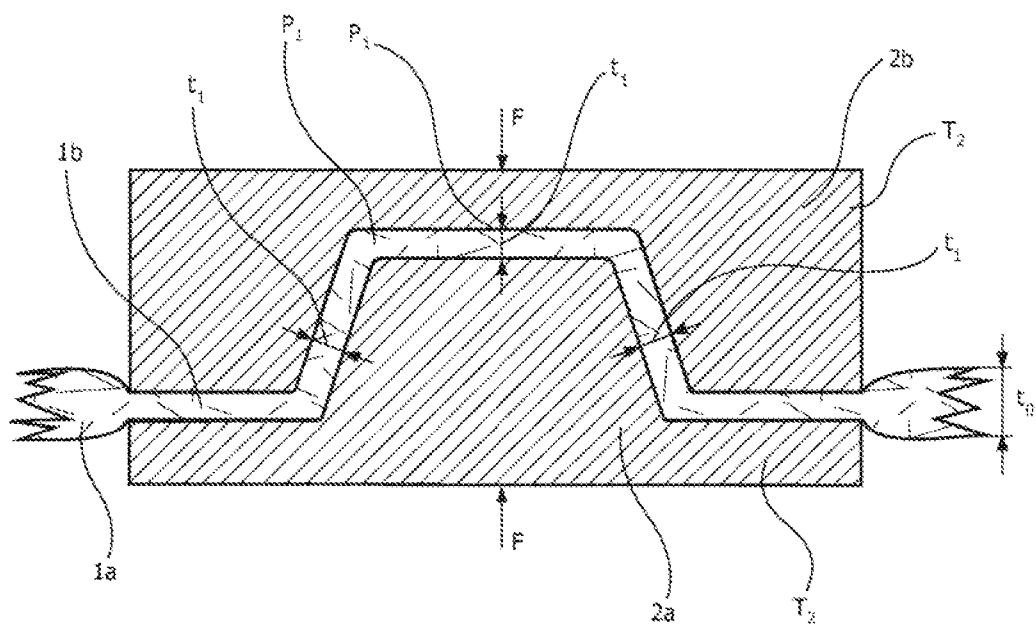
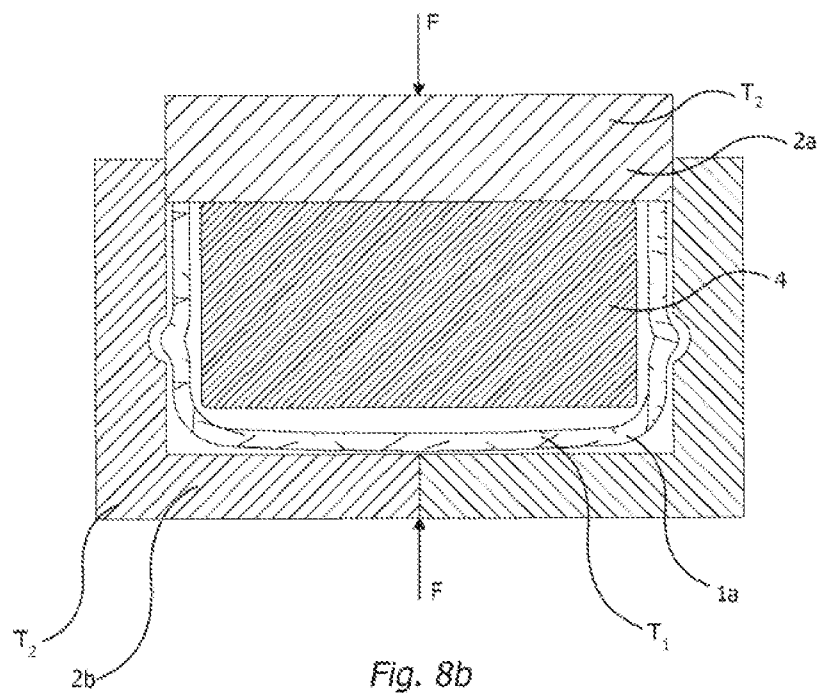
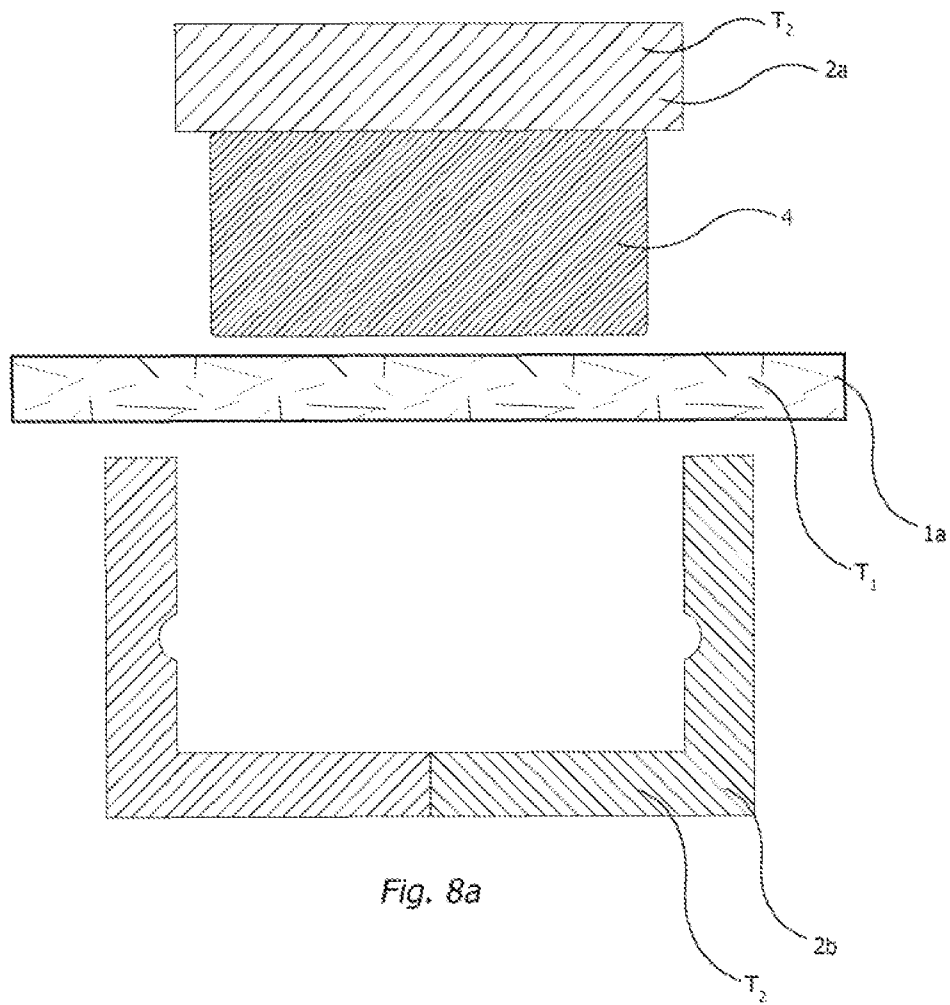


Fig. 7b



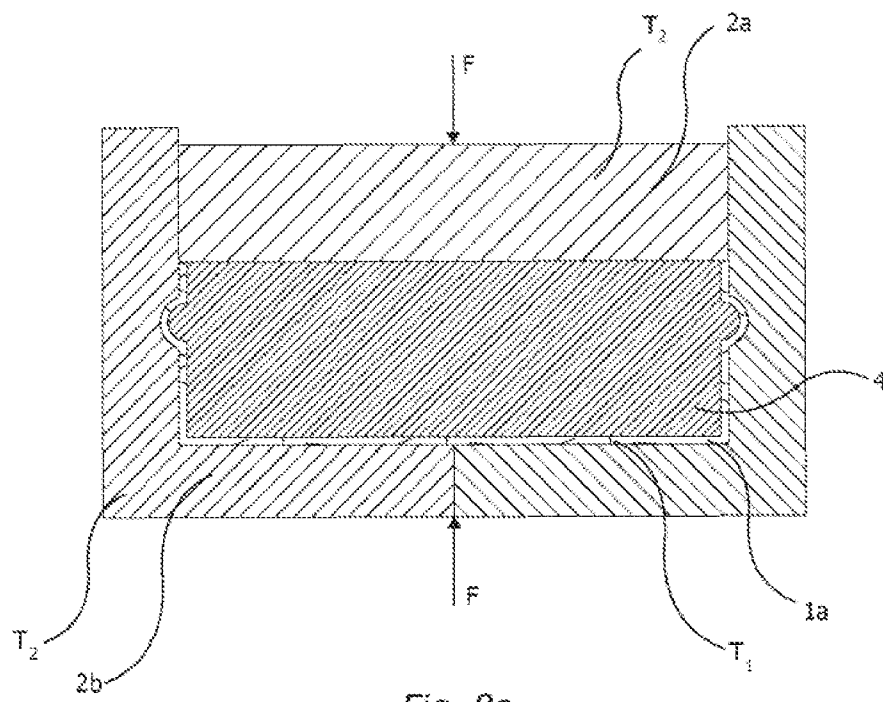


Fig. 8c

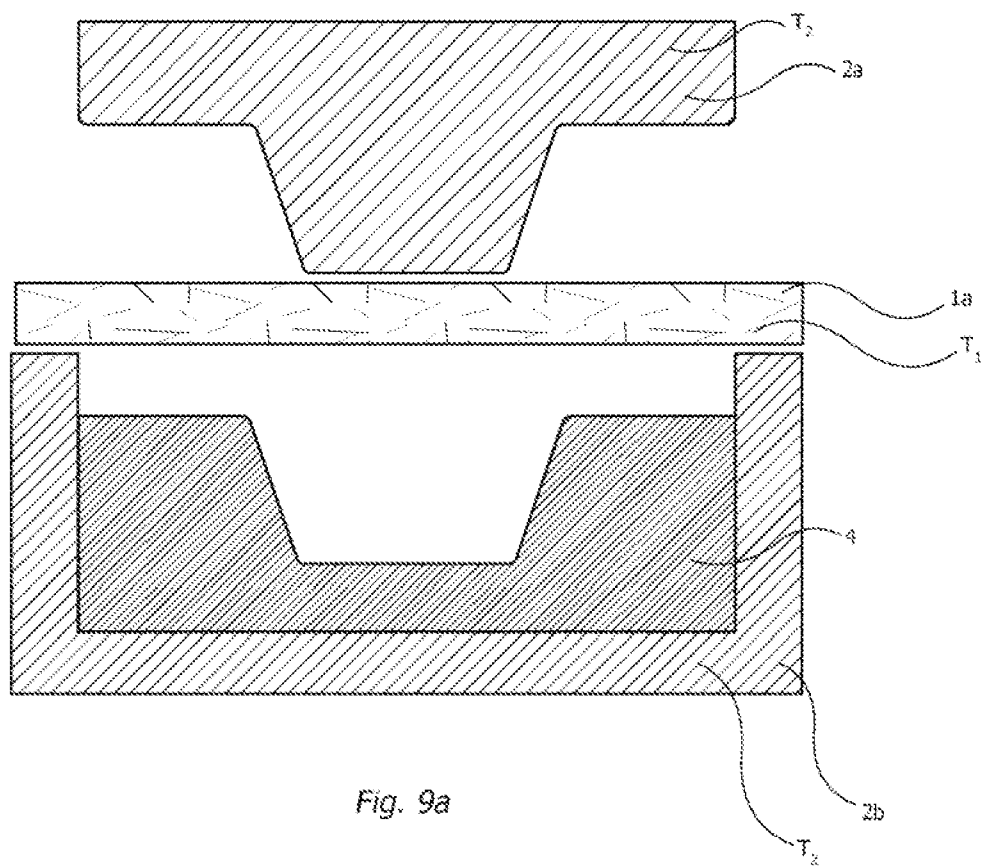


Fig. 9a

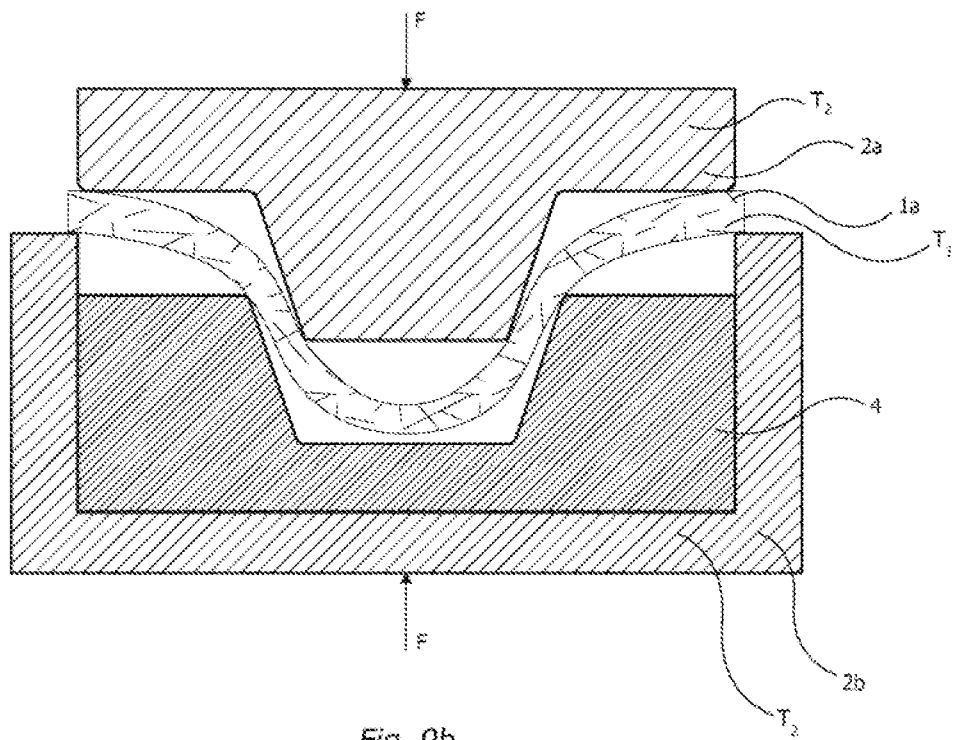


Fig. 9b

