

①9 RÉPUBLIQUE FRANÇAISE  
INSTITUT NATIONAL  
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE  
PARIS

①1 N° de publication : **2 646 667**  
(à n'utiliser que pour les  
commandes de reproduction)

②1 N° d'enregistrement national : **89 05861**

⑤1 Int Cl<sup>6</sup> : C 03 C 27/12, 8/00; B 32 B 17/10; B 60 J 1/02.

①2

## DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

②2 Date de dépôt : 3 mai 1989.

③0 Priorité :

④3 Date de la mise à disposition du public de la  
demande : BOPI « Brevets » n° 45 du 9 novembre 1990.

⑥0 Références à d'autres documents nationaux appa-  
rentés :

⑦1 Demandeur(s) : SAINT-GOBAIN VITRAGE S.A. — FR.

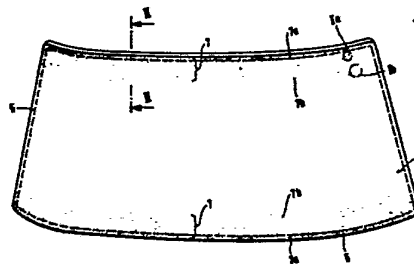
⑦2 Inventeur(s) : Schäfer Wolfgang.

⑦3 Titulaire(s) :

⑦4 Mandataire(s) : René Muller, Saint-Gobain Recherche.

⑤4 Vitrage avec bande filtrante et procédé de fabrication.

⑤7 Un pare-brise pour véhicules automobiles est pourvu d'une bande filtrante atténuant le rayonnement lumineux et le rayonnement thermique dans la région supérieure du vitrage. La bande filtrante est faite d'un revêtement transparent 7 en un émail à cuire, qui contient au moins un métal noble présent en dispersion colloïdale. Le revêtement 7 a une épaisseur de couche constante, est appliqué par sérigraphie et présente sur l'ensemble de sa surface, un tramage géométriquement rigoureux. Le taux de couverture de la trame s'élève à 85 - 95 % dans la région proche du bord.



FR 2 646 667 - A1

D

1

5

10

VITRAGE AVEC BANDE FILTRANTE ET PROCEDE DE FABRICATION.

15

La présente invention concerne un vitrage pour véhicules automobiles, en particulier un pare-brise, présentant dans sa partie supérieure une bande filtrante atténuant le rayonnement lumineux et le rayonnement thermique.

20

Des pare-brise ayant une bande filtrante dans leur partie supérieure sont connus dans diverses réalisations.

25

Il s'agit généralement de pare-brise feuilletés constitués de deux feuilles de verre et d'une feuille intercalaire thermoplastique en polyvinylbutyral, teintée dans sa partie supérieure au moyen de colorants organiques. Un des inconvénients de ce pare-brise est que les colorants organiques présentent une résistance à la lumière réduite, de sorte que les régions teintées transparentes de la feuille de polyvinylbutyral se décolorent à la longue sous l'effet de la lumière.

30

Dans le cas d'un autre type de pare-brise connu, comme décrit par exemple dans la publication DE-OS 1 596 919, la feuille de verre constituant le vitrage est pourvu d'une couche filtrante à base d'un oxyde métallique, la fabrication de cette couche filtrante s'effectuant par application sur le vitrage d'une solution de composés métalliques inorganiques qui sont oxydés en oxydes métalliques colorants à des températures plus élevées. La solution contenant les composés métalliques est pulvérisée sur la surface du verre et la pyrolyse a lieu au cours d'un traitement

35

thermique suivant. Le procédé de pulvérisation ne permet que difficilement d'appliquer une couche mince et uniforme de manière reproductible, de sorte que ce procédé ne convient pas dans une fabrication industrielle.

5 D'autres pare-brise connus, par exemple du document DE-OS 1 951 616, utilisent une bande filtrante faite d'un émail à cuire inorganique qui est imprimé par sérigraphie sur la surface du verre et qui est cuit ensuite. L'émail à cuire est constitué dans ce cas d'un verre à bas point de  
10 fusion et de pigments colorés en oxydes métalliques dispersés dans le verre. L'émail à cuire peut présenter une transparence de 0 à 40 %. L'émail à cuire est imprimé selon une trame telle que la transmission de la lumière augmente progressivement depuis le bord jusqu'à la zone de vision.  
15 De telles bandes filtrantes à base d'émaux à cuire du type glaçure présentent aussi divers inconvénients. Les émaux à cuire du type glaçure ont, par exemple, toujours une certaine turbidité propre et forment une surface rugueuse, de sorte qu'ils ne permettent pas d'obtenir des couches  
20 transparentes claires. De plus, il est connu que la solidité du verre est diminuée par des couches du type glaçure, ce qui s'avère gênant étant donné que les bandes filtrantes couvrent une surface relativement étendue du vitrage.

L'invention a pour but de procurer un vitrage avec une  
25 bande filtrante, pouvant être fabriquée industriellement et de façon reproductible.

Le vitrage conforme à l'invention présente au moins deux couches, à savoir une feuille de verre silicaté extérieure et une couche absorbant de l'énergie en matière  
30 plastique, disposée sur son côté orienté vers l'habitacle pour les passagers, le côté de la feuille de verre extérieure adjacent à la couche de matière plastique étant muni dans sa partie supérieure d'une bande filtrante formée d'un revêtement transparent en un émail à cuire contenant au  
35 moins un métal noble présent en dispersion colloïdale, ledit revêtement étant appliqué par sérigraphie, ayant une épaisseur constante et présentant sur la totalité de sa surface, un tramage géométriquement rigoureux, le taux de couverture de la trame dans la région proche du bord étant

de 85 à 95 %.

Il s'avère selon l'invention que le revêtement formant la bande filtrante contenant un métal noble présent en dispersion colloïdale, c'est-à-dire le revêtement en un 5 émail dit de lustre, présente les propriétés de filtrage nécessaires et que, d'autre part, le pouvoir d'adhérence de la couche de matière plastique adjacente n'est pas sensiblement diminué.

Le fait que le revêtement formant la bande filtrante 10 soit recouvert par au moins une couche de matière plastique constitue une caractéristique essentielle de l'invention. Etant donné que les couches d'émail de lustre, dont la bande filtrante est constituée, présentent une surface particulièrement sensible, on élimine de cette façon le 15 risque que la couche de la bande filtrante accuse au cours du temps des perturbations optiques gênantes par modification de sa surface.

De plus, le type d'application du revêtement formant la bande filtrante et la structure géométrique de ce revê- 20 tement sont particulièrement importants. Il est en effet connu que l'aspect extérieur de lustres, à cause de la très faible épaisseur de leur couche située dans le domaine des interférences, dépend fortement de l'épaisseur de la couche. Lorsque l'épaisseur de la couche varie, comme c'est 25 forcément le cas lorsque le revêtement est appliqué par pulvérisation ou immersion, au moins dans la région de la transition vers la zone de vision non recouverte, on aboutit inévitablement à des phénomènes d'interférences et aux phénomènes d'irisation connus. Ceci est évité conformément 30 à l'invention au moyen du procédé de sérigraphie qui garantit l'obtention d'une épaisseur de couche constante. L'effet dégradé souhaité de la bande filtrante, c'est-à-dire la transparence croissante en direction de la zone de vision, n'est obtenu que par la diminution du taux de cou- 35 verture par application d'un tramage géométrique rigoureux. L'aspect extérieur particulièrement bon de la bande filtrante est dû au fait qu'il n'y a pas de grande surface imprimée continue, mais une structure géométrique tramée, dans laquelle le taux de couverture atteint, dans la région

la plus dense, c'est-à-dire dans la région proche du bord, tout au plus environ 95 % et de préférence environ 90 %. Alors que dans cette région, on utilise dans le revêtement une trame de trous présentant une répartition uniforme serrée de petits trous, dans la région de la transition vers la zone de vision, les trous de la trame deviennent de plus en plus grands. Finalement, la trame se fond dans la zone de vision sous la forme d'une trame de points dans laquelle les points deviennent de plus en plus petits. En variante, on peut bien entendu également choisir une trame de points pure dans laquelle la grosseur des points va en augmentant progressivement de la zone centrale vers le bord du vitrage jusqu'à ce qu'au voisinage de ce bord, les points se touchent et se chevauchent partiellement. La forme géométrique des trous ou des points peut être très variée.

Lorsque le taux de couverture est élevé, des trames à trous dans lesquelles les trous présentent un diamètre de 0,2 mm à 0,5 mm se sont révélées satisfaisantes. Pour un taux de couverture de 85 %, les écarts entre les centres des trous sont de 0,46 mm pour un diamètre de trou de 0,2 mm et de 1,15 mm pour un diamètre de trou de 0,5 mm. Pour un taux de couverture de 95 %, les écarts réciproques entre les trous sont d'environ 0,8 mm pour un diamètre de trou de 0,2 mm, et d'environ 2 mm, pour un diamètre de trou de 0,5 mm.

Dans la région à haute densité optique, c'est-à-dire dans la région proche du bord, dans laquelle le taux de couverture atteint 85 à 95 %, on imprime de préférence une trame de trous dans laquelle les trous présentent un diamètre de 0,3 à 0,4 mm et des écarts réciproques de 0,7 à 1,6 mm. Dans la région à faible densité optique, c'est-à-dire dans la région de transition entre la bande filtrante et la zone de vision proprement dite du pare-brise, la trame imprimée est, de préférence, une trame de points dans laquelle les points présentent un diamètre de 0,3 à 0,4 mm et des écarts réciproques de 0,7 à 1,6 mm. Dans la région à densité optique décroissante, c'est-à-dire dans la région intermédiaire entre la région à haute densité optique et la

région de transition, les grosseurs des points ou des trous des trames et leurs écarts réciproques varient dans la mesure propre à engendrer l'effet dégradé souhaité de la bande filtrante.

5 Les lustres connus, par exemple par la publication du brevet GB 925 171 qui conviennent particulièrement pour le procédé conforme à l'invention, contiennent dans leur composition apte à l'impression, en plus des métaux nobles présents en dispersion colloïdale, des sels métalliques  
10 qui, lors de la cuisson, forment des oxydes métalliques par pyrolyse. Ces oxydes métalliques contribuent essentiellement à la formation de couches et à l'amélioration de l'adhérence des particules de métaux nobles.

Suivant un développement avantageux de l'invention, la  
15 région inférieure du pare-brise est également pourvue d'une bande filtrante qui possède les mêmes propriétés que la bande filtrante supérieure et qui est imprimée en même temps que la bande filtrante supérieure. Au moyen de cette bande filtrante disposée dans la région inférieure du  
20 pare-brise, on peut obtenir, par exemple, une diminution sensible de l'effet d'éblouissement dû aux rayons solaires réfléchis par le capot-moteur et aux projecteurs de véhicules arrivant en sens inverse. En outre, cette bande filtrante inférieure contribue nettement à une amélioration de  
25 la climatisation de l'habitacle des véhicules.

Selon une réalisation du vitrage, celui-ci comporte en outre une bande marginale formant cadre en un émail à cuire opaque, disposée sur la feuille de verre extérieure, sur le côté adjacent à la couche de matière plastique, le long du  
30 bord de la feuille de verre. Dans cette réalisation, la bande filtrante et le cadre en émail se chevauche au moins dans la région supérieure du vitrage.

Un vitrage, notamment un pare-brise présentant cette structure peut être fabriqué à l'aide des méthodes de fabrication usuelles. Il possède l'adhérence nécessaire des  
35 couches individuelles dans la région marginale et peut être monté sans difficulté par le procédé de collage dans les cadres de fenêtres de la carrosserie. Il s'est avéré que le revêtement formant la bande filtrante peut être appliqué

sur le revêtement formant cadre en émail à cuire opaque qui sert à empêcher la vue sur le cordon d'adhésif situé derrière le pare-brise à l'état monté et, en outre, à protéger la matière adhésive contre l'action des rayons UV. Bien que dans le cas du revêtement formant cadre opaque comme dans celui du revêtement formant la bande filtrante, il s'agit chaque fois d'un émail à cuire, et que ces deux émaux à cuire présentent des compositions et des propriétés entièrement différentes, il s'est avéré que les deux couches peuvent être appliquées sans difficulté l'une sur l'autre et peuvent être cuites ensemble dans un processus de traitement thermique unique.

D'autres réalisations et développements avantageux de l'invention ressortiront des revendications dépendantes et de la description suivante de diverses formes d'exécution de l'invention, donnée avec référence aux dessins annexés, dans lesquels :

La fig. 1 illustre un pare-brise conforme à l'invention, formé d'un vitrage feuilleté comprenant deux feuilles de verre silicaté et une couche de matière plastique intercalaire ;

La fig. 2 illustre un pare-brise conforme à l'invention, formé d'une seule feuille de verre silicaté et d'une couche de matière plastique qui y est unie, et

La fig. 3 illustre un autre pare-brise conforme à l'invention, formé d'un vitrage feuilleté et d'une couche antiéclat supplémentaire.

Les dessins montrent chaque fois une coupe verticale dans la région supérieure d'un pare-brise.

La forme d'exécution représentée sur la fig. 1 est un vitrage feuilleté dit classique comprenant une feuille de verre silicaté extérieure 1, une feuille de verre silicaté intérieure 2 qui, lorsque le pare-brisé est en place sur le véhicule, est orientée vers l'habitacle et une couche intercalaire thermoplastique absorbant de l'énergie 3, par exemple en polyvinylbutyral.

Sur la surface de la feuille de verre extérieure 1 tournée vers la couche intercalaire 3 est disposée le long du bord du pare-brise, une bande marginale formant cadre

en un émail à cuire opaque. L'épaisseur de couche de cette bande marginale est d'environ 5 à 30 micromètres. Cet émail à cuire est en l'occurrence un émail à bas point de fusion fait d'un verre de base dont le point de fusion est d'environ 580°C et d'oxydes de métaux lourds pigmentaires colorés incorporés dans le verre de base. Des émaux à cuire de ce type sont bien connus et disponibles dans le commerce. Ils sont imprimés sur la feuille de verre 1 par un procédé sérigraphique.

10 Le revêtement 7 formant la bande filtrante est disposé sur la même surface de la feuille de verre 1 que celle qui porte la bande marginale 5. Le revêtement 7 est situé dans la région marginale de la feuille de verre sur la couche d'émail formant la bande marginale 5. Il a une épaisseur de  
15 couche d'environ 100 à 300 nm et est constitué d'un émail à cuire dit lustre, c'est-à-dire d'une couche d'émail transparente dont l'effet de coloration est dû à la présence de métaux nobles en dispersion colloïdale. A titre de métal noble, on peut utiliser en particulier l'or, l'argent, le  
20 platine et le palladium, l'adhérence des métaux nobles étant améliorés par le fait que le revêtement contient des oxydes métalliques, comme par exemple de l'oxyde de bismuth. Le revêtement est formé avec les propriétés de coloration souhaitées lors de la cuisson par pyrolyse de sels  
25 métalliques d'acides résiniques, qui sont amenés à une viscosité adéquate pour le dépôt au moyen d'huiles essentielles telle que l'huile de lavande. Des compositions adéquates pour former le lustre sont décrites par exemple dans la publication de brevet GB 925 171. Le dépôt du re-  
30 vêtement formant la bande filtrante 7 est à nouveau effectué par sérigraphie.

Bien que le revêtement formant la bande filtrante 7 présente une transparence élevée, il ne s'agit pas ici d'un revêtement continu, c'est-à-dire ininterrompu, mais en tout  
35 cas d'un revêtement tramé de façon régulière, qui est interrompu selon un agencement régulier. Dans la région présentant la plus haute densité optique, c'est-à-dire dans la région 7a du revêtement qui est voisine de la bande marginale 5, le taux de couverture de la surface va de 85

jusqu'à 95 % et est, de préférence, d'environ 90 %. Ce taux de couverture est atteint au moyen d'une trame de trous adéquate. Pour atteindre un taux de couverture de 90 %, dans le cas d'un diamètre de trou de 0,3 mm, la distance de centre à centre entre deux trous est de 0,85 mm. Grâce à cette trame de trous, les inconvénients normalement observés dans le cas d'émaux du type lustre, à savoir une irisation du revêtement et l'influence perturbatrice de défauts d'homogénéité ponctuels, comme des particules de poussière, qui viennent en contact avec le revêtement avant la cuisson du lustre, sont de manière étonnante évités avec certitude et on obtient un aspect optique uniforme et net de la bande filtrante aussi bien en transparence qu'en réflexion.

Dans la région 7 b du revêtement formant la bande filtrante qui est voisine de la zone de vision du pare-brise, dans laquelle est formée une transition continue de la bande filtrante avec une transparence croissante, le taux de couverture diminue de façon continue et, dans la section d'extrémité 7 b, n'atteint plus qu'environ 5 %, par le fait que le lustre n'est plus imprimé ici que sous la forme de fins points. Dans la section d'extrémité de cette région, les points présentent, par exemple, un diamètre de 0,35 mm et des écarts réciproques de 3 mm.

Après l'impression de la bande marginale 5, on laisse durcir l'émail imprimé, en le soumettant, suivant sa composition, à un traitement faisant appel à un rayonnement IR ou à un rayonnement UV. Sur l'émail ainsi durci et la région superficielle du vitrage qui s'y raccorde, on applique alors de façon tramée la composition de lustre préparée pour la sérigraphie. Le lustre imprimé est ensuite soumis à un processus de séchage adéquat, puis les deux couches d'émail sont cuites ensemble à la température d'environ 600°C qui est nécessaire pour le bombage des vitrages. Finalement, les deux feuilles de verre 1 et 2 sont soumises de la manière habituelle aux traitements ultérieurs donnant le vitrage feuilleté.

Dans le cas du pare-brise représenté sur la fig. 2, il s'agit d'un pare-brise de sécurité qui comprend une seule

feuille de verre silicaté 11 disposée du côté extérieur du véhicule et une feuille de matière plastique 12 disposée du côté intérieur du véhicule. La feuille de matière plastique 12 présente, d'une part, des propriétés d'absorption de l'énergie et d'autre part, une surface résistante aux rayures. Elle peut être formée d'une ou de deux couches en polyuréthane. Dans ce dernier cas, la feuille de matière plastique comprend une couche à base d'un polyuréthane présentant des propriétés d'absorbeur d'énergie et une couche de revêtement autocicatrisable à base d'un polyuréthane thermodurcissable.

Des vitrages de sécurité ayant cette structure sont connus et sont décrits, par exemple, dans les publications de brevets européens 0 131 523 et 0 132 198.

Dans le cas représenté sur la Fig. 2, le revêtement 7 formant la bande filtrante, qui est fait d'un émail à cuire de type lustre, est disposé initialement sur la feuille de verre 11. La composition de l'émail à cuire du type lustre ainsi que l'agencement et la fabrication du revêtement 7 correspondent à l'exemple de réalisation décrit en relation avec la Fig. 1. Le revêtement 7 formant la bande filtrante présente à nouveau une région optiquement dense 7a et une région de transition 7b dans laquelle, par le choix d'une trame adéquate, le taux de couverture diminue. La bande marginale formant cadre 5 est dans ce cas imprimée sur le revêtement 7 qui, après l'opération d'impression, est tout d'abord soumis à un processus de séchage. La cuisson des deux couches 7 et 5 s'effectue également dans ce cas au cours d'une opération de cuisson commune. Dans une variante, on peut d'abord imprimer le cadre 5, puis le revêtement 7.

Une autre forme d'exécution d'un pare-brise conforme à l'invention est illustrée sur la Fig. 3. Dans ce cas, un vitrage feuilleté tel qu'il a été décrit en détail à propos de la Fig 1, est pourvu, en outre, d'une feuille ou couche antiéclat 15, par exemple en un polyuréthane hautement élastique à réticulation tridimensionnelle possédant des propriétés d'autocicatrisation et d'antilacération. Des couches de polyuréthane convenables sont décrites par

10  
exemple dans les publications de brevets français 2 398 606  
et 2 574 396.

L'agencement et la configuration du revêtement 7  
formant la bande filtrante et de la bande marginale 5 cor-  
5 respondent à la forme d'exécution décrite à propos de la  
Fig. 1.

10

15

20

25

30

35

## REVENDEICATIONS

1. Vitrage, en particulier, pare-brise pour véhicules automobiles, présentant une bande filtrante atténuant le rayonnement lumineux et le rayonnement thermique dans la 5 région supérieure du vitrage, caractérisé en ce que :

a) le vitrage présente au moins deux couches, à savoir une feuille de verre silicaté extérieure (1 ; 11) et une couche absorbant de l'énergie (3 ; 12) en une matière plastique, disposée sur le côté de la feuille de verre 10 orienté vers l'habitacle ;

b) la bande filtrante est disposée sur le côté de la feuille de verre silicaté extérieure (1 ; 11) qui est adjacent à la couche de matière plastique (3 ; 12) et est formée d'un revêtement transparent (7) en un émail à cuire 15 contenant au moins un métal noble présent en dispersion colloïdale ;

c) le revêtement (7) formant la bande filtrante a une épaisseur de couche constante, est appliqué par sérigraphie et présente, sur la totalité de sa surface, un tramage 20 géométriquement rigoureux, le taux de couverture de la trame dans la région proche du bord étant de 85 à 95 %.

2. Vitrage selon la revendication 1, caractérisé en ce que le revêtement transparent (7) formant la bande filtrante présente une épaisseur de 100 à 300 nanomètres.

25 3. Vitrage selon une des revendications 1 et 2, caractérisé en ce que le revêtement (7) contenant un ou plusieurs métaux nobles en dispersion colloïdale contient un ou plusieurs oxydes métalliques, en particulier de l'oxyde de bismuth, qui sont formés lors de la cuisson, par pyrol- 30 yse de sels métalliques adéquats.

4. Vitrage selon une des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que le revêtement (7) formant la bande filtrante est constitué, dans la région (7a) à forte densité optique, par une trame de trous, dans laquelle les trous 35 présentent un diamètre de 0,2 à 0,5 millimètre et des écarts réciproques de 0,5 à 2 millimètres.

5. Vitrage selon une des revendications 1 à 4, caractérisé en ce que le revêtement (7) formant la bande filtrante est constitué, dans la région de transition (7b) à

densité optique plus faible, par une trame de points, dans laquelle les points présentent un diamètre de 0,2 à 0,5 millimètre et des écarts réciproques de 0,5 à 2 millimètres.

5 6. Vitrage selon une des revendications 1 à 5, caractérisé en ce que la région inférieure est également pourvue d'un revêtement transparent formant une bande filtrante fait du même émail à cuire transparent que celui utilisé dans la bande filtrante prévue dans la région supérieure et  
10 appliqué au cours de la même opération d'impression que celui-ci.

7. Vitrage selon une des revendications 1 à 6, caractérisé en ce qu'une bande marginale formant cadre (5) en un émail à cuivre opaque est disposée sur la feuille de verre  
15 extérieure (1 ; 11), sur le côté adjacent à la couche de matière plastique (3 ; 12), le long du bord de la feuille de verre, la bande marginale (5) et le bord de la bande filtrante se chevauchent.

8. Vitrage selon la revendication 7, caractérisé en ce  
20 que la bande marginale formant cadre (5) en émail à cuivre opaque présente une épaisseur de couche de 5 à 30 micromètres.

9. Pare-brise selon une des revendications 1 à 8, caractérisé en ce que sur la couche absorbant de l'énergie  
25 (3) en matière plastique est disposée une feuille de verre silicaté (2) qui forme la surface du pare-brise tournée vers l'habitacle pour les passagers.

10. Pare-brise selon une des revendications 1 à 8, caractérisé en ce qu'il est formé uniquement d'une feuille  
30 de verre 1 et d'une feuille en matière plastique présentant des propriétés d'absorption de l'énergie et une surface résistante aux rayures et forme, comme telle, la surface du pare-brise tournée vers l'habitacle pour les passagers.

11. Pare-brise selon la revendication 10, caractérisé  
35 en ce que la feuille de matière plastique est formée d'une couche à base d'un polyuréthane ayant des propriétés d'absorbeur d'énergie et d'une couche de revêtement autocicatrisable à base d'un polyuréthane thermodurcissable.

12. Pare-brise selon une des revendications 1 à 8,

13

caractérisé en ce qu'une feuille de verre silicaté (2) est disposée sur la couche absorbant de l'énergie (3) en matière plastique et une couche antiéclat (15) en matière plastique présentant une surface autocicatrisable est disposée sur la feuille de verre silicaté (2).

13. Procédé pour la fabrication d'un pare-brise selon une des revendications 1 à 12, caractérisé en ce que l'émail à cuire constituant la bande marginale formant cadre (5) est imprimé en une épaisseur de couche de 5 à 30 micromètres par sérigraphie sur la feuille de verre (1 ; 11) et est séché, le revêtement (7) formant la bande filtrante est imprimé sur la bande marginale séchée (5) et sur la surface adjacente de la feuille de verre (1) en une épaisseur de couche de 100 à 300 nanomètres par sérigraphie et est séché, ou en opérant en ordre inverse en imprimant d'abord la bande filtrante, puis la bande marginale, et les deux couches imprimées et séchées sont cuites au cours d'un traitement thermique.

20

25

30

35

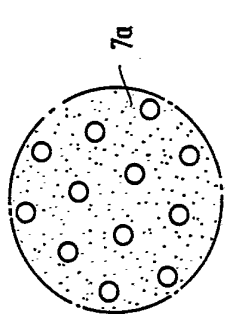


Fig. 1a

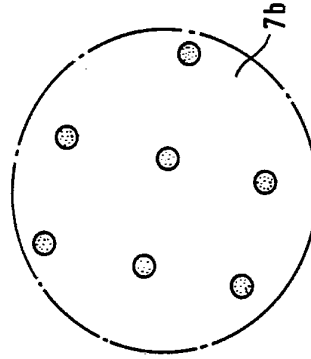


Fig. 1b

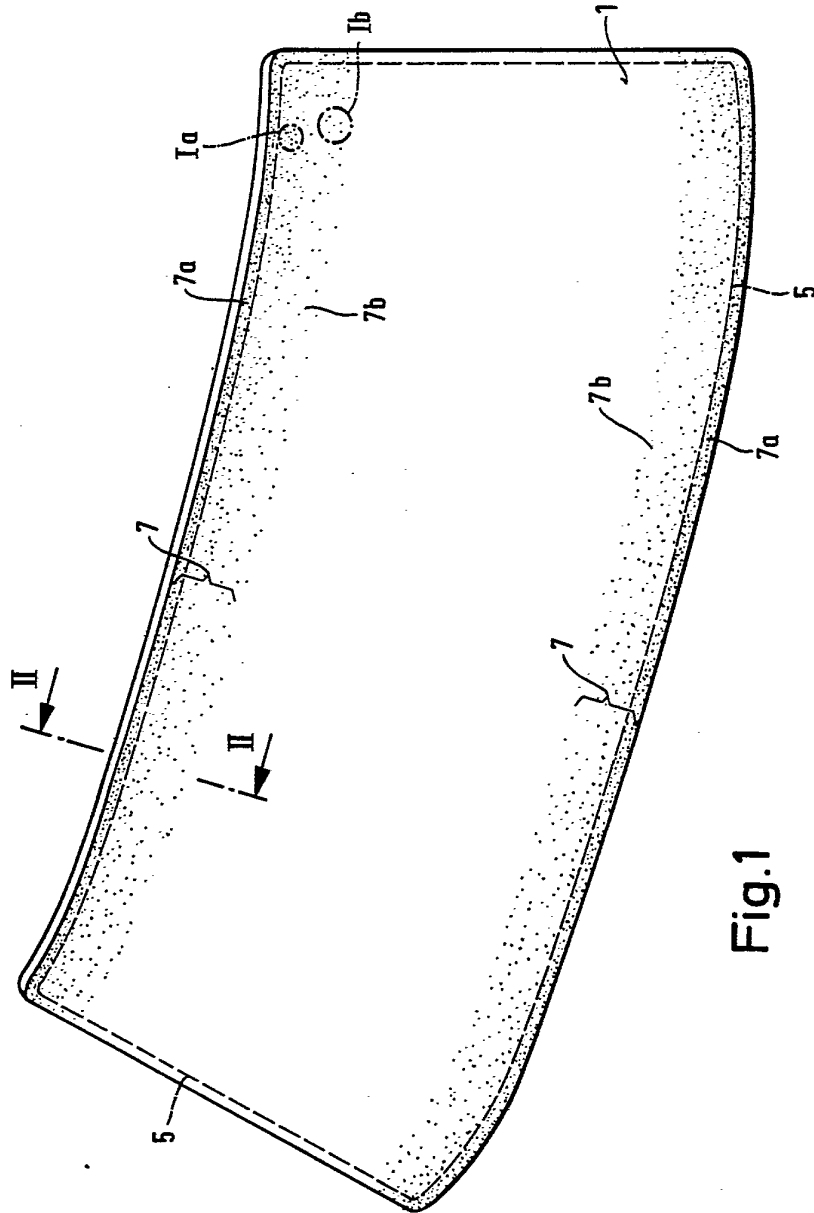
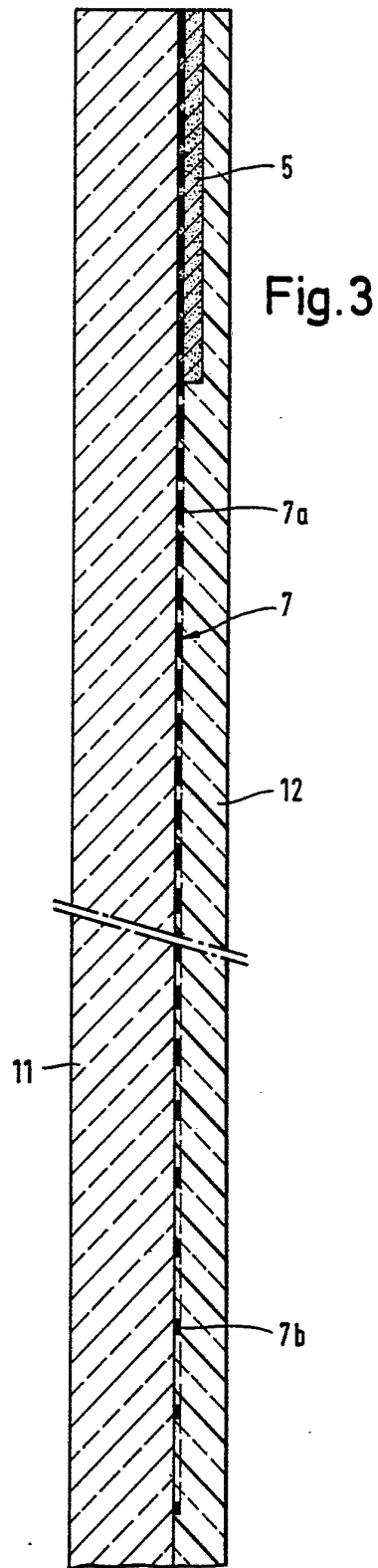
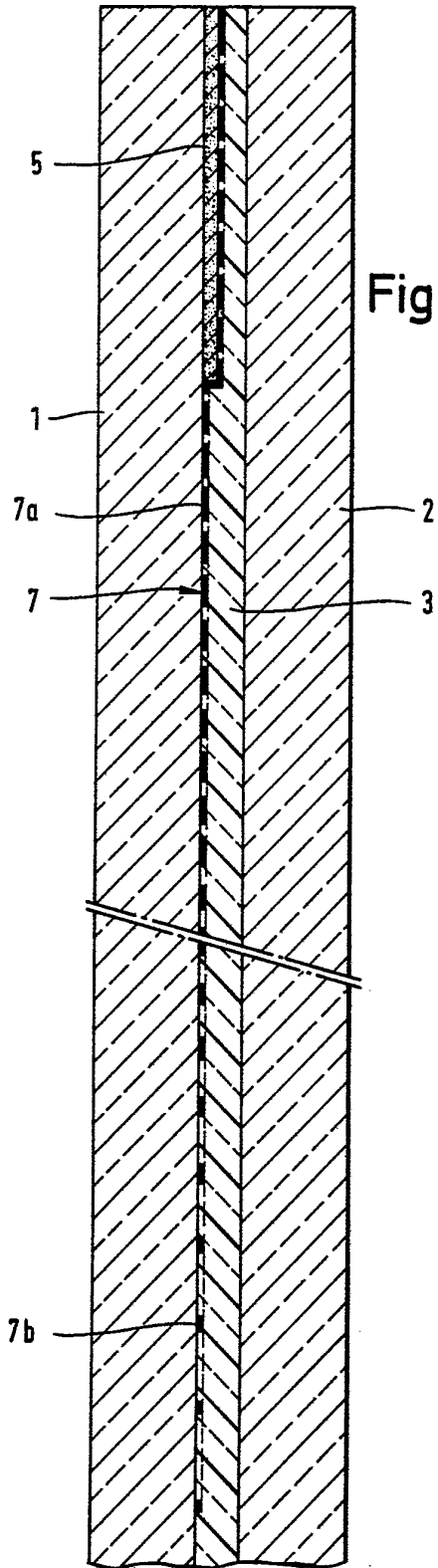


Fig. 1



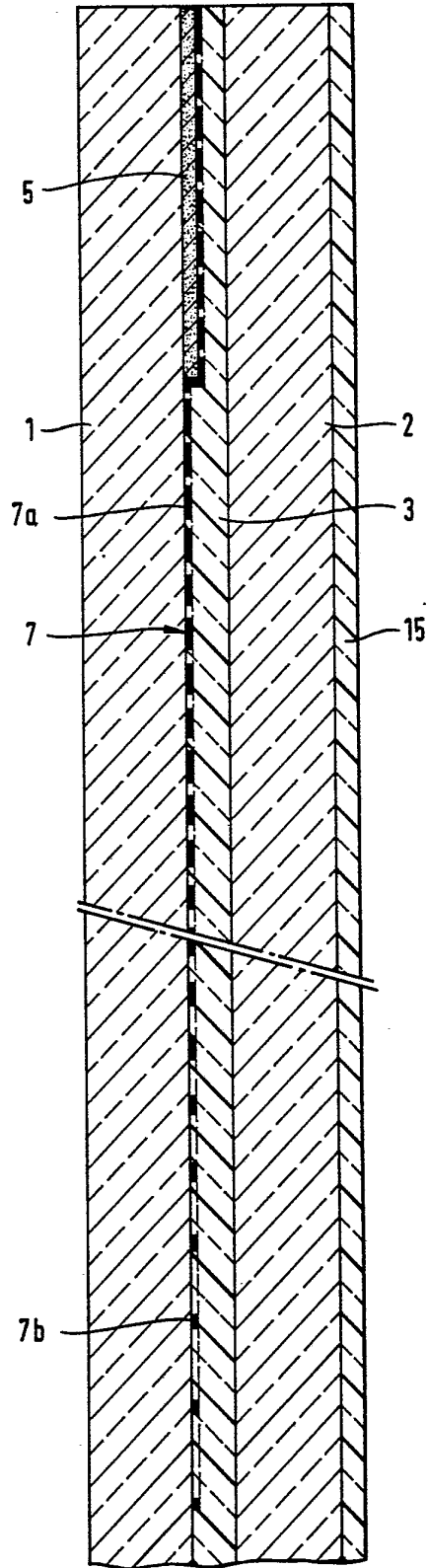


Fig.4