ITALIAN PATENT OFFICE

Document No.

102011901974191A1

Publication Date

20130225

Applicant

I.R.C.A. S.P.A. INDUSTRIA RESISTENZE CORAZZATE E AFFINI

Title

RADIATORE A SCAMBIO TERMICO BIFASICO CON OTTIMIZZAZIONE DEL TRANSITORIO DI EBOLLIZIONE

TITOLO: RADIATORE A SCAMBIO TERMICO BIFASICO CON OTTIMIZZAZIONE DEL TRANSITORIO DI EBOLLIZIONE.

Campo dell'invenzione

La presente invenzione si riferisce a radiatori e piastre radianti, che utilizzano un fluido vettore intermedio, allo stato bifasico, per realizzare lo scambio termico con l'ambiente esterno.

Stato della tecnica

Gli apparecchi, quali radiatori o pannelli radianti, che usano un fluido allo stato bifasico, sono caratterizzati da una sorgente esterna di calore, di norma di dimensioni compatte (ad esempio un riscaldatore elettrico commerciale) che riscalda un fluido vettore intermedio contenuto all'interno del radiatore. Il suddetto fluido vettore intermedio, ricevendo energia termica dalla sorgente esterna, passa allo stato bifasico e viene mantenuto in questo stato termodinamico di equilibrio vapore-liquido, durante il funzionamento normale e in transitorio dell'apparecchio riscaldante.

Il fluido vettore a contatto con la superficie calda della sorgente esterna, viene vaporizzato e risale negli appositi canali ricavati all'interno di tubi verticali innestati/collegati al collettore stesso del radiatore.

A contatto con la parete di questi canali, più fredda poiché a diretto contatto con l'ambiente esterno da riscaldare, il fluido vettore condensa formando un film di liquido condensato che realizza lo scambio termico con la parete trasferendo il calore ricevuto dalla sorgente esterna al corpo del radiatore e quindi all'ambiente esterno.

Il film di condensato discende lambendo le pareti dei canali fino al collettore venendo di nuovo in contatto con la superficie calda della sorgente esterna reiniziando il ciclo di evaporazione e condensazione. (Fig. 2a,2b)

In molti casi non avviene la condensazione a film sulle pareti dei sopracitati canali, a causa di un non corretto dimensionamento delle parti meccaniche del corpo radiante e un non ottimale controllo del transitorio di scambio termico per ebollizione del fluido vettore a contatto con la sorgente esterna.

I canali di efflusso se non sono dimensionati correttamente provocano un'eccessiva accelerazione del vapore che, risalendo a velocità elevata, impedisce la ridiscesa o addirittura la formazione del film liquido sulle pareti stesse dei canali provocando fenomeni, come condensazione a gocce, deleteri per lo scambio termico e soprattutto provocando sovratemperature del fluido specialmente in prossimità della superficie della sorgente esterna.

In queste condizioni, il film di condensato scende lentamente a causa dell'ostruzione provocata dall'eccessiva velocità della massa di vapore che risale i canali lasciando la superficie della sorgente esterna di calore priva o coperta solo in parte del liquido necessario anche al suo raffreddamento. In sostanza il vapore fortemente surriscaldato crea un "tappo" che impedisce il ritorno del film di liquido verso il collettore. Lo scambio termico dalla sorgente esterna di calore al fluido vettore è quindi governato dalla conduzione attraverso il vapore e dallo scambio radiante tra vapore surriscaldato e pareti. Il trasferimento di calore dalla zona evaporante alla parte radiante potrebbe essere governato da uno scambio convettivo nel vapore surriscaldato. Si perde quindi la peculiarità dei tubi di calore: quella di poter trasferire il calore molto più rapidamente di qualsiasi altro mezzo conduttivo, con conseguente allungamento dei tempi per arrivare a regime.

Si può verificare il fenomeno dell'ebollizione a film con decremento dello scambio termico, che diventa quasi del tutto di natura convettiva, portando a sovratemperature deleterie per la superficie della sorgente esterna (con conseguente diminuzione della vita del componente, fenomeni di stress termico elevato, sovratemperature che accelerano i fenomeni di corrosione) e soprattutto per il fluido.

I fluidi utilizzati sono di norma fluidi della famiglia degli hidrofluoroeteri, e fluidi frigorigeni derivanti dal campo della criogenica che presentano un limite superiore alla temperatura massima di funzionamento, oltre il quale si verificano degradi chimici con formazione di composti che in alcuni casi possono corrodere la struttura stessa del radiatore.

Il problema tecnico da risolvere e' quindi quello di come creare le condizioni affinché un radiatore del tipo descritto possa sfruttare al meglio il meccanismo di scambio termico bifasico a regime e durante il transitorio di ebollizione. Un tale

radiatore deve poter mantenere il regime di ebollizione nucleata dove le temperature del fluido a contatto con la sorgente esterna di calore si mantengono al di sotto del cosiddetto valore critico con la massimizzazione del coefficiente di scambio termico. Situazione questa che favorisce l'affidabilità del componente esterno (sorgente esterna) riscaldante, del fluido e dell'intero apparecchio.

Sommario dell'invenzione

Scopo della presente invenzione è quello di ottenere un radiatore che sia in grado di ovviare ai problemi descritti. L'obiettivo viene raggiunto mediante un radiatore del tipo termosifone, che comprende, conformemente alla rivendicazione 1, un collettore situato nella parte più bassa del radiatore, e atto a contenere un fluido vettore intermedio, una sorgente esterna di calore, posta all'interno del collettore, in cui il fluido vettore intermedio è atto ad evaporare a contatto con una superficie calda della sorgente esterna di calore, almeno un tubo verticale contenente al proprio interno uno o più canali collegati al collettore ed in comunicazione con lo stesso, caratterizzato dal fatto che tale collettore e tali canali sono dimensionati in maniera tale che ogni loro sezione attraversata dal fluido vettore intermedio, al netto dello spessore del film liquido di condensa, ha la dimensione lineare più ristretta maggiore di due volte il diametro d_b di una bolla di vapore del fluido intermedio che, durante il funzionamento, si stacca dalla superficie calda della sorgente esterna durante l'ebollizione del fluido intermedio, il diametro d_b essendo calcolato secondo la formula

(1)
$$d_b = C_d \beta \sqrt{\frac{2\sigma}{g(\varrho_l - \varrho_v)}}$$

dove:

Cd = costante caratteristica del fluido vettore intermedio,

 β = angolo di contatto del liquido sulla parete

 σ = tensione superficiale

ρ = densità del liquido e del vapore

g = accelerazione di gravità.

Tale soluzione permette di evitare il fenomeno dell'ostruzione che impedisce al film di condensato di ricadere in tempi sufficientemente brevi per non lasciare la superficie della sorgente esterna priva di liquido. Definendo la dimensione dei canali attraversati dal fluido vettore intermedio, in base al diametro d_b di una bolla di vapore del fluido intermedio, essendo d_b dipendente dal tipo di fluido vettore intermedio scelto e calcolabile secondo formule che si trovano in letteratura, si ottimizza lo scambio termico tra la sorgente di calore, il fluido vettore intermedio e le pareti del radiatore.

Breve descrizione delle figure

Ulteriori caratteristiche e vantaggi dell'invenzione risulteranno maggiormente evidenti alla luce della descrizione dettagliata di alcuni criteri di progettazione e dalle forme di realizzazione di un radiatore funzionante in regime bifasico, con l'aiuto anche delle seguenti figure:

La Fig. 1a rappresenta la curva di ebollizione che mette in relazione il flusso di calore con la differenza fra la temperatura della superficie della sorgente esterna in contatto con il liquido e la temperatura di saturazione del liquido stesso,

la Fig. 1b rappresenta il diagramma del coefficiente di scambio termico sorgentefluido in stato bifasico in funzione della sovratemperatura,

La Fig.2a e la Fig.2b rappresentano schematicamente un canale ricavato all'interno di un tubo verticale del radiatore visto in sezione trasversale, dove è rappresentato il sistema di funzionamento, e dove la sorgente esterna di calore si trova in contatto diretto con il fluido (Fig.2a) o indiretto tramite la parete di fondo del canale (Fig.2b).

Le Figg. 3a, 3b, 3c rappresentano possibili forme di canali di efflusso con sezioni diverse dalla forma circolare.

La Fig.4 rappresenta, vista in sezione traversa una forma possibile di realizzazione del tubo verticale con all'interno il canale di efflusso ed il suo raccordo con il collettore,

le Figg. 5a – 5e rappresentano diversi tipi di microalettature inserite sulla superficie della sorgente esterna di calore all'interno del collettore.

<u>Descrizione in dettaglio di una forma di realizzazione preferita</u> dell'invenzione

La fig. 1 descrive la curva di ebollizione in funzione del flussi termico e della differenza fra temperatura della superficie della sorgente esterna di calore in contatto con il liquido e la temperatura di saturazione del liquido stesso. Nella zona 1 il calore viene trasmesso solo per convezione, questa zona e' caratterizzata da un basso scambio di calore. All'aumentare della temperatura lo scambio termico aumenta velocemente, nella zona 2, dovuto alla formazione di bolle, in cui si ha il fenomeno dell' ebollizione nucleata.

L'ebollizione nucleata continua anche nella zona 3, ma l'incremento dello scambio termico con l'aumentare della temperatura tende a saturare fino a raggiungere il punto A dove si ha il cosiddetto flusso critico. Oltre questo punto si ha un crollo del flusso di calore. La spiegazione del fenomeno e' dovuta all'aumento parossistico del numero delle bolle che rende sempre più difficile lo scambio termico tra superficie della sorgente esterna ed il liquido. Il massimo dell'efficienza, come si può vedere dalla curva di Fig.1, si ha tra la zona 2 e la zona 3. Oltre il punto A (Fig. 1) lo scambio termico crolla mentre aumenta la temperatura della superficie della sorgente esterna con conseguenze deleterie per la stessa come per il fluido impiegato. La temperatura della superficie della sorgente esterna può aumentare anche per mancanza di liquido che serve anche per il raffreddamento della superficie stessa. Questo può avvenire a causa di un allungamento del tempo di ridiscesa del film di condensa a causa dell'ostruzionismo causato dalle bolle di vapore che risalgono il canale. E' necessario quindi che si mantenga un regime d'ebollizione intorno al punto dove s'incontrano la zona 2 e la zona 3 della curva della Fig. 1, e che i canali ed il collettore siano dimensionati correttamente. Una buona regola di progettazione impone che la dimensione lineare più ristretta della sezione di attraversamento del canale sia almeno 2 volte il diametro do della bolla di vapore come ricavata empiricamente (Rshsenow et al.: "Heat, Mass and Momentum Transfer", Prentice-Hall, N.J., 1961):

(1)
$$d_b = C_d \beta \sqrt{\frac{2\sigma}{g(\varrho_I - \varrho_o)}}$$

dove:

Cd = costante caratteristica del fluido vettore intermedio,

 β = angolo di contatto del liquido sulla parete

 σ = tensione superficiale

ρ = densità del liquido e del vapore

g = accelerazione di gravità

A titolo di esempio per il fluido HFE 7100 la formula diviene:

$$d_{bub} \approx 0.0208 \beta \ell_c$$

$$\ell_c = \left[\frac{\sigma}{(\rho_t - \rho_s)g} \right]^{1/2}$$

e risulta un diametro di bolla di 0,76mm circa. Il fluido HFR 7100 ®, è venduto da 3M, e consiste di idrofluoroetere.

In alternativa questo fluido vettore intermedio può anche essere etanolo, o un polimero sintetico, come per es. R113 (clorofluorocarbonio),.

Tutte le formule in letteratura si riferiscono a geometrie in cui il flusso termico è uniforme su tutta la superficie laterale

Nel caso in cui la sezione del canale di passaggio del fluido vettore intermedio non sia circolare, si dovrà considerare il diametro idraulico dato da :

$$d_{idr} = \frac{4 \cdot A}{p}$$

didr = diametro equivalente idraulico

A = area della sezione del canale

P = perimetro del canale (perimetro bagnato dal film liquido)

La condizione di progetto diventa:

$$d_{idr_equivalente} > 2 \cdot d_b$$

con db = diametro della bolla

Vantaggiosamente la dimensione lineare più ristretta della sezione di attraversamento del canale è al massimo 5 volte il diametro d₀ della bolla di vapore.

L'informazione relativa al diametro della bolla è utilizzata per valutare la forma della sezione. Il diametro idraulico non è sufficiente per dimensionare una sezione di passaggio. La sezione di passaggio del canale di efflusso, alcuni esempi dei quali sono dati in Fig.3, non deve presentare restringimenti o zone ristrette che siano inferiori al doppio del diametro della bolla. Le dimensioni A1 e A2 devono essere almeno il doppio del diametro della bolla prima del distacco dalla superficie della sorgente primaria di flusso termico (sorgente esterna). Il diametro del canale deve anche essere grande abbastanza da far si che il defluire del fluido sia governato dalla solo forza di gravità, ovvero che la tensione superficiale sia trascurabile. Questo dovrebbe avvenire quando il cosiddetto numero di Bond Bo è > 3, questa condizione determina il diametro del canale di efflusso:

$$d_{idr} > \sqrt{Bo} \cdot l_c = \sqrt{3} \cdot l_c$$
 | con | $lc = \sqrt{\sigma/g\Delta\rho}$

Questa è la condizione perché si abbia un "macrochannel" secondo la definizione di P. Cheng et al. (Mesoscale and Microscale Phase change Heat Transfer, Advances in Heat Transfer Vol. 39, pp. 469-573, 2006). Se questa condizione non e' soddisfatta il flusso di condensa può essere instabile. Il problema dell'instabilità diventerà più drammatico al diminuire del diametro del canale (minichannel e microchannel) man mano che l'effetto della tensione superficiale diventerà dominante.

La Fig. 4 rappresenta una possibile realizzazione di un radiatore conforme all'invenzione.

Il collettore 1 e' formato da un tubo di sezione circolare che contiene al suo interno una sorgente esterna di calore 2, ed un vettore intermedio fluido inizialmente, ovvero in assenza di riscaldamento, allo stato liquido. Il canale di efflusso 4 è ricavato all'interno di un tubo verticale 5, le cui pareti sono in contatto con l'ambiente esterno. Le due frecce verticali indirizzate verso il collettore rappresentano il film di condensa che ricade verso il collettore, mentre la freccia

indirizzata verso l'alto rappresenta il flusso di vapore. S rappresenta quella parte di sezione del canale di efflusso che si sovrappone con la sezione del collettore e che, per favorire un corretto efflusso dal collettore ed il ritorno del film di condensato, deve essere almeno l'80% della sezione del canale. Un altro parametro da tenere in considerazione riguarda il grado di ricoprimento, definito come il rapporto tra la somma dei diametri netti dei canali misurata lungo l'asse del collettore e la lunghezza del collettore, interessata allo scambio termico, misurata lungo l'asse dello stesso, tale rapporto deve essere superiore a 0,6.

Come descritto precedentemente, tutte le sezioni del canale e del collettore devono avere una dimensione lineare superiore ad almeno 2 volte il diametro della bolla, definito secondo la formula (1). Per non superare la soglia di flusso critico, il punto A della curva di Fig. 1, e' necessario dimensionare adeguatamente la superficie dell'interfaccia (6, Fig. 4) di scambio termico della sorgente esterna . A titolo di esempio il flusso termico critico per fluido HFE 7100 è di 22.6 W/cm2, valutato alla temperatura di saturazione del fluido a circa 90°C.

Bisogna inoltre evitare l'effetto del confinamento del fluido. Il fluido deve poter evaporare e risalire dal collettore alla sommità del radiatore attraverso i canali nei tubi verticali fluendo attraverso canali e spazi sufficientemente ampi. Il flusso critico può raggiungersi facilmente al ridursi dello spazio libero. La superficie dell'interfaccia (6, Fig.4) preferibilmente e' corrugata o dotata di opportune microalettature, di forme varie come mostrato dalle Figg. 5a – 5e, in modo tale da aumentare il numero dei punti di nucleazione, ovvero dei punti dove s'innescano le bolle, tenendo presente che qualsiasi interstizio deve avere dimensioni caratteristiche superiori ad almeno 2 volte il diametro della bolla. Per facilitare l'innesco del meccanismo di ebollizione-evaporazione e condensazione, anche a basse temperature e bassi flussi termici della sorgente esterna, si deve prevedere di realizzare un adeguato grado di vuoto all'interno del radiatore, sarà necessario quindi dotare il radiatore di opportuni dispositivi, come ad esempio valvole con molla di richiamo, per potere, mediante pompe, assicurare il vuoto ma anche per potere effettuare il riempimento del radiatore stesso. In questo modo si garantisce l'ebollizione del fluido partendo da uno stato termodinamico caratterizzato da una pressione regnante minore della pressione normale atmosferica e quindi con una 11319PTIT

temperatura di ebollizione del fluido più bassa della corrispondente alla pressione normale ambiente. Il radiatore descritto e' anche dotato di un sistema di controllo a controreazione per impedire che il fluido raggiunga una temperatura tale da superare la soglia del flusso di calore critico, punto A della curva della Fig. 1. Un bulbo a diretto contatto con il fluido presente allo stato bifasico in prossimità della superficie di scambio della sorgente esterna (6, Fig. 4) rivela la temperatura del fluido, tale valore di temperatura viene quindi trasformato in un segnale elettrico che può così essere elaborato tramite una elettronica di controllo opportunamente integrata nel radiatore. Il sistema di controllo a controreazione permette di controllare che la temperatura del fluido non superi un determinato valore regolando l'intensità del flusso termico erogato dalla sorgente esterna, tale regolazione andrà a modulare il flusso termico della sorgente esterna in modo da rimanere nel tratto di curva corrispondente all'ebollizione nucleata (tratti 2, 3 della curva della Fig. 1)

Il radiatore a fluido bifasico descritto può essere utilizzato in svariate applicazioni laddove sia richiesto scambio termico con superficie a temperatura e flusso termico specifico per unità di superficie costante, ad esempio in ambiti industriali per riscaldamento di stampi o in ambito domestico per piani di cottura o riscaldamento di locali.

Rivendicazioni

- 1. Radiatore del tipo termosifone, che comprende
- un collettore (1) situato nella parte più bassa del radiatore, e atto a contenere un fluido vettore intermedio
- una sorgente esterna di calore (2), posta all'interno del collettore, in cui il fluido vettore intermedio è atto ad evaporare a contatto con una superficie calda della sorgente esterna di calore (2),
- almeno un tubo verticale (5) contenente al proprio interno uno o più canali (4) collegati al collettore (1) ed in comunicazione con lo stesso, caratterizzato dal fatto che tale collettore (1) e tali canali (4) sono dimensionati in maniera tale che ogni loro sezione attraversata dal fluido vettore intermedio, al netto dello spessore del film liquido di condensa, ha la dimensione lineare più ristretta maggiore di due volte il diametro de di una bolla di vapore del fluido intermedio che, durante il funzionamento, si stacca dalla superficie calda della sorgente esterna durante l'ebollizione del fluido intermedio, il diametro de essendo

(1)
$$d_b = C_d \beta \sqrt{\frac{2\sigma}{g(\varrho_i - \varrho_o)}}$$

dove:

C_d = costante caratteristica del fluido vettore intermedio,

 β = angolo di contatto del liquido sulla parete

 σ = tensione superficiale

calcolato secondo la formula

ρ = densità del liquido e del vapore

g = accelerazione di gravità

- 2. Radiatore secondo la rivendicazione 1, in cui i canali (4) sono dei "macrocanali" ovvero in cui il deflusso del liquido verso il collettore (1) è governato solo dalla forza di gravità mentre la tensione superficiale e' trascurabile rispetto a quella.
- 3. Radiatore secondo una delle rivendicazioni precedenti, comprendente un bulbo per la misura della temperatura collocato a diretto contatto con il fluido presente allo stato bifasico in prossimità della superficie di scambio (6) della sorgente

esterna, tale misura può essere trasformata in un segnale elaborabile tramite elettronica di controllo integrata nel radiatore stesso.

- 4. Radiatore secondo la rivendicazione 3, comprendente un sistema di controllo controreazionato per non far superare alla temperatura del fluido un determinato valore tramite una regolazione dell'intensità del flusso termico erogato dalla sorgente esterna, tale regolazione può modulare il flusso termico della sorgente esterna in modo che il fluido rimanga in regime di ebollizione nucleata (tratto 2, 3 fig. 1) durante il funzionamento.
- 5. Radiatore secondo la rivendicazione 2 in cui il collettore e il canale di efflusso durante il funzionamento si trovano ad una pressione interna inferiore alla pressione atmosferica normale, in modo da favorire il meccanismo di ebollizione-evaporazione, anche a basse temperature e bassi flussi termici della sorgente esterna.
- 6. Radiatore secondo la rivendicazione 5, comprendente una di valvola con molla di richiamo per effettuare un determinato grado di vuoto e per effettuare il riempimento del collettore (1).
- 7. Radiatore secondo la rivendicazione 2, in cui la proiezione (S) sulla verticale del canale di efflusso (4) attraverso il quale fluisce il fluido, presenta una sovrapposizione di almeno l'80% con la sezione del collettore.
- 8. Radiatore secondo la rivendicazione 7, in cui il rapporto R tra la somma dei diametri netti dei canali di efflusso (4) misurati lungo l'asse del collettore (1) e la lunghezza del collettore interessata allo scambio termico, misurata sull'asse del collettore, è superiore a 0,6.
- 9. Radiatore secondo la rivendicazione 1 dove tra la sorgente esterna ed il fluido sono interposte delle superfici con microalettature, per facilitare l'innesco di un maggior numero di bolle.

CLAIMS

- 1. A radiator of the thermosiphon type, which comprises
- a collector (1) placed in the lowest part of the radiator, and adapted to contain an intermediate vector fluid
- an external heat source (2), placed within the collector, wherein the intermediate vector fluid is adapted to evaporate in contact with a hot surface of the external heat source (2),
- at least one vertical tube (5) containing therein one or more channels (4) connected to the collector (1) and communicating with the same, characterised in that said collector (1) and said channels (4) are dimensioned so that each section thereof crossed by the intermediate vector fluid, excluding the thickness of the liquid film of condensate, has a smallest linear dimension which is two times bigger than the diameter d_b of a vapour bubble of the intermediate fluid which, during operation, detaches itself from the hot surface of the external source during boiling of the intermediate fluid, the diameter db being calculated according to the formula

$$d_{b} = C_{d}\beta \sqrt{\frac{2\sigma}{g(\varrho_{i} - \varrho_{b})}}$$

where:

 C_d = constant characteristic of the intermediate vector fluid,

 β = angle of contact of the liquid on the wall

 σ = surface tension

 ρ = liquid and vapour density

g = acceleration of gravity

- 2. A radiator according to claim 1, wherein the channels (4) are "macro-channels", i.e. in which the flow of the liquid towards the collector (1) is governed solely by the force of gravity while the surface tension is minor with respect to the former.
- 3. A radiator according to one of the preceding claims, comprising a bulb for measuring the temperature which is placed in direct contact with the fluid present in the biphasic state close to the exchange surface (6) of the external source; such measurement can be transformed into a signal which is processable by means of

control electronics integrated into the radiator itself.

- 4. A radiator according to claim 3, comprising a feedback-type control system in order to prevent the temperature of the fluid exceeding a determined value by means of adjustment of the intensity of the thermal flow supplied by the external source, such adjustment can modulate the thermal flow of the external source so that the fluid remains in nucleate boiling regime (2, 3) during operation.
- 5. A radiator according to claim 2, wherein, during operation, the collector and the efflux channel have an internal pressure which is lower than normal atmospheric pressure, so as to favour the boiling-evaporation mechanism, even at low temperatures and low thermal flows from the external source.
- 6. A radiator according to claim 5, comprising a valve with a return spring in order to carry out a determined level of vacuum and in order to carry out the filling of the collector (1).
- 7. A radiator according to claim 2, wherein the projection (S) on the vertical of the efflux channel (4) through which the fluid flows, has an overlap of at least 80% with the section of the collector.
- 8. A radiator according to claim 7, wherein the relation R between the sum of the net diameters of the efflux channels (4) measured along the axis of the collector (1) and the length of the collector affected by the heat exchange, measured on the axis of the collector, is greater than 0,6.
- 9. A radiator according to claim 1, wherein surfaces with micro-fins are interposed between the external source and the fluid, in order to facilitate the generation of a greater number of bubbles.

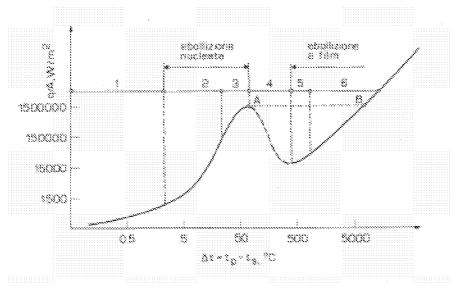


Fig.1a

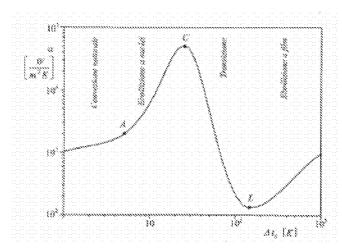


Fig.1b

SISTEMA CHIUSO SORGENTE PRIMARIA A CONTATTO INDIRETTO CON IL FLUIDO

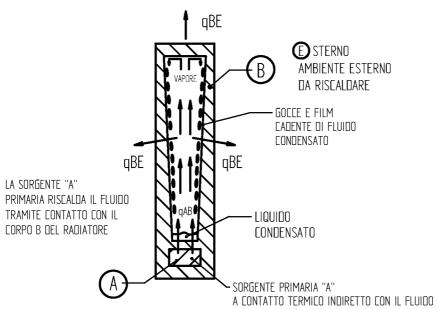


Fig. 2a

SORGENTE PRIMARIA "A" A DIRETTO CONTATTO CON IL FLUIDO BIFASE. SISTEMA CHIUSO

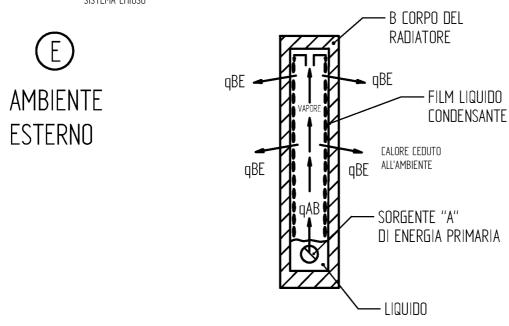


Fig. 2b

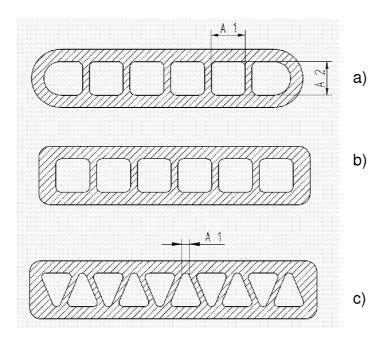


Fig.3

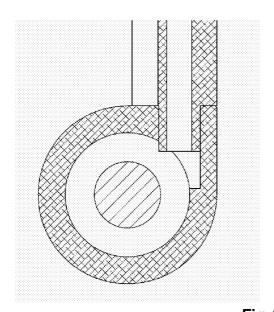


Fig.4

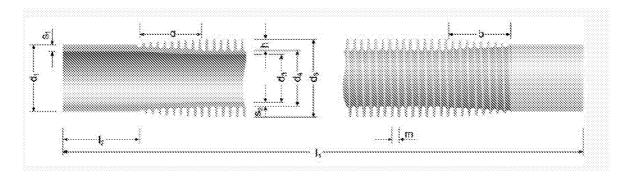


Fig.5a

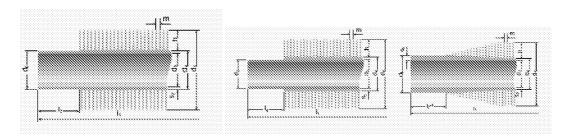


Fig.5b Fig.5.c

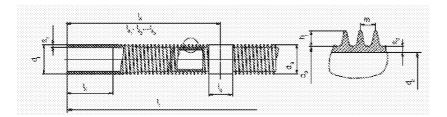


Fig.5d

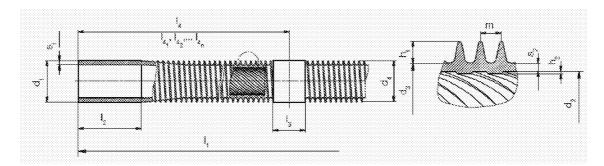


Fig.5e