

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 392 695**

51 Int. Cl.:

**B05B 17/06** (2006.01)

**A01M 1/20** (2006.01)

**A61L 9/14** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Número de solicitud europea: **07838698 .4**

96 Fecha de presentación: **21.09.2007**

97 Número de publicación de la solicitud: **2086314**

97 Fecha de publicación de la solicitud: **12.08.2009**

54 Título: **Método para distribuir materiales activos líquidos empleando un transductor ultrasónico**

30 Prioridad:

**22.09.2006 US 846598 P**

45 Fecha de publicación de la mención BOPI:

**13.12.2012**

45 Fecha de la publicación del folleto de la patente:

**13.12.2012**

73 Titular/es:

**THE PROCTER & GAMBLE COMPANY (100.0%)  
One Procter & Gamble Plaza  
Cincinnati, OH 45202, US**

72 Inventor/es:

**TOLLENS, FERNANDO RAY;  
DIERSING, STEVEN LOUIS;  
HECHT, JOHN PHILIP;  
SCHROECK, STEVEN JAMES y  
MAHONEY, WILLIAM PAUL III**

74 Agente/Representante:

**DE ELZABURU MÁRQUEZ, Alberto**

**ES 2 392 695 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 distribuir materiales activos líquidos empleando un transductor ultrasónico.

### Campo de la invención

5 La presente invención se refiere a un método de distribución de materiales activos líquidos, como perfumes, ambientadores, formulaciones insecticidas y materiales volátiles, a la atmósfera mediante un transductor electromecánico.

### Antecedentes de la invención

10 Existen una serie de procesos para la generación de gotículas líquidas utilizando la activación electromecánica. Un método para realizar dicha distribución es atomizar un líquido mediante un sistema de suministro que comprende una estructura perforada que se hace vibrar mediante un transductor electromecánico que tiene una estructura plana o de pared delgada compuesta, y está dispuesto para funcionar en un modo curvado. El líquido se suministra a la estructura perforada que vibra y se pulveriza desde la misma en gotículas al vibrar la estructura perforada. Dichos ensayos en la técnica se ilustran en las patentes US-3.543.122, US-3.615.041, US-4.479.609, US-4.533.082, US-4.790.479, US-5.518.179, US-5.297.734, US-6.341.732, US-6.378.780 y US-6.386.462 y en los documentos WO 03/047766 y US-2006/0175426.

15 Aunque los sistemas de suministro del transductor electromecánico son conocidos en la técnica, también son conocidas sus dificultades. Específicamente, se han hecho intentos de mejorar la distribución global de los líquidos atomizados en un volumen de espacio. Sin embargo, muchos de estos sistemas de suministro se resienten debido a su incapacidad de propulsar hacia arriba adecuadamente los líquidos atomizados en el aire a una altura suficiente para conseguir una dispersión suficiente que maximice la distribución de los materiales activos. Así que existe la necesidad de obtener un sistema de suministro mejorado y un método para generar gotículas de materiales activos líquidos para aumentar la distribución de los materiales activos líquidos más allá de lo que es posible hacerlo en la actualidad.

### Sumario de la invención

25 La invención se refiere a un método de distribución de materiales activos líquidos a una atmósfera que comprende las siguientes etapas: proporcionar una cantidad de los materiales activos líquidos; proporcionar un transductor electromecánico que esté en comunicación con el material activo líquido; activar el transductor electromecánico para distribuir el material activo líquido a la atmósfera; y llevar a cabo la activación para un primer período de tiempo de entre 60 y 500 milisegundos en el que dicho transductor electromecánico se acopla o desacopla a una estructura perforada que tiene varias perforaciones (2a, 2b, 2c), teniendo dichas perforaciones un diámetro de 4 micrómetros a 7 micrómetros.

### Breve descripción de los dibujos

Aunque la especificación concluye con reivindicaciones que se refieren de modo particular y reivindican de modo claro la invención, se cree que la presente invención se comprenderá mejor a la vista de la descripción siguiente junto con los dibujos que la acompañan, en los cuales:

La Fig. 1 es una vista en perspectiva de una realización de un sistema de suministro de la presente invención;

35 La Fig. 2 muestra un corte transversal de una realización de un sistema de suministro de la presente invención;

La Fig. 3 es una vista superior ampliada de una realización del elemento generador de gotículas de la presente invención;

La Fig. 4 muestra un corte transversal ampliado del elemento generador de gotículas de la Fig. 3.

### Descripción detallada de la invención

40 La presente invención se refiere al método descrito anteriormente. Sin pretender imponer ninguna teoría, se considera que controlar la longitud del primer período y el segundo período proporciona un sorprendente aumento en la distribución de los materiales volátiles contenidos dentro de los materiales activos líquidos y la reducción de la habituación hedónica del usuario. Al controlar la longitud del primer período de tiempo y el segundo período de tiempo, se mejora la transición o evaporación de gotículas líquidas a gotículas más finas y/o un estado gaseoso como medio de aumentar la distribución de materiales activos líquidos. La longitud del primer período controla el aumento del índice de evaporación de las gotículas de los materiales activos líquidos, mejorando su transición a un estado atomizado o molecular y aumentando su capacidad de mantenerse transportados por el aire, dispersarse y propagarse. A su vez, esto aumenta la acción de llenado de la habitación de los materiales activos líquidos. El segundo período o el período de desactivación, en un aspecto, el usuario lo utiliza para reducir el nivel de habituación. La habituación es un proceso que utiliza el sistema sensorial olfativo para reducir su sensibilidad a un aroma detectado previamente. Sin pretender imponer ninguna teoría, el segundo período de tiempo permite que la concentración de componentes volátiles de los materiales activos líquidos se reduzca por debajo del umbral del nivel de habituación, lo que permite reajustar el sistema olfativo y volver a detectar

o volver a percibir el aroma. En efecto, el primer y segundo períodos aumentan sorprendentemente la intensidad percibida de la formulación activa líquida.

#### Mecanismo de temporización

5 El control de la longitud del primer período y el segundo período según la presente invención crea un efecto de chimenea o “transporte del aire” en el que la cantidad de arrastre de aire además de la velocidad de las gotículas aumenta, lo que da como resultado un aumento en la concentración de materiales volátiles transportados por el aire de los materiales activos líquidos como se puede constatar por la mayor detección de componentes. Este efecto mejora la intensidad percibida y el hedonismo del material activo líquido. El mecanismo de temporización se puede controlar mediante cualquiera de los sistemas inteligentes conocidos en la técnica. El primer período y el segundo período, que forman conjuntamente un ciclo operativo, se pueden repetir al menos una vez. En otra realización, el ciclo operativo se repite hasta que el material activo líquido se acaba y/o se agota la fuente de alimentación.

10 En una realización que no forma parte de la invención, el primer período es al menos de aproximadamente 5 milisegundos; en otra realización que no forma parte de la invención al menos de aproximadamente 10 milisegundos; en otra realización que no forma parte de la invención al menos de aproximadamente 20 milisegundos; en otra realización que no forma parte de la invención al menos de aproximadamente 50 milisegundos; en otra realización que no forma parte de la invención al menos de aproximadamente 100 milisegundos; en otra realización que no forma parte de la invención al menos de aproximadamente 250 milisegundos; en otra realización que no forma parte de la invención al menos de aproximadamente 500 milisegundos; en otra realización que no forma parte de la invención al menos de aproximadamente 1 segundo; en otra realización que no forma parte de la invención al menos de aproximadamente 5 segundos. En otra realización que no forma parte de la invención, el primer período está entre aproximadamente 5 milisegundos y aproximadamente 5 segundos; en otra realización que no forma parte de la invención entre aproximadamente 10 milisegundos y 1 segundo; en otra realización que no forma parte de la invención entre aproximadamente 20 milisegundos y 500 milisegundos; en otra realización que no forma parte de la invención entre aproximadamente 50 milisegundos y 100 milisegundos.

25 En otra realización que no forma parte de la invención, el sistema de suministro para generar las gotículas de material activo líquido comprende: un depósito en el que el depósito contiene un material activo líquido; un transductor electromecánico, que se activa mediante una fuente de alimentación; un elemento generador de gotículas asociado operativamente con dicho transductor electromecánico y colocado para entrar en contacto con dicho material activo líquido; un mecanismo de temporización para activar dicho transductor electromecánico sobre un primer período, y alternativamente desactivar dicho transductor electromecánico sobre un segundo período; y en el que dicho mecanismo de temporización que activa dicho transductor electromecánico para un primer período está entre 20 milisegundos y 120 milisegundos. De forma alternativa, el primer período está entre 25 milisegundos y 120 milisegundos, de forma alternativa entre 50 milisegundos y 120 milisegundos, de forma alternativa entre 50 milisegundos y 100 milisegundos y de forma alternativa entre 60 milisegundos y 80 milisegundos.

35 En una realización, el segundo período está entre aproximadamente 1 segundo y 30 horas; en otra realización entre aproximadamente 1 segundo y 24 horas; en otra realización entre aproximadamente 5 segundos y 12 horas; en otra realización entre aproximadamente 5 segundos y 8 horas; en otra realización entre aproximadamente 5 segundos y 6 horas; en otra realización entre aproximadamente 5 segundos y 4 horas; en otra realización entre aproximadamente 5 segundos y 3 horas; en otra realización entre aproximadamente 5 segundos y aproximadamente 2 horas; en otra realización entre aproximadamente 5 segundos y aproximadamente 1 hora; en otra realización entre aproximadamente 5 segundos y 45 minutos; en otra realización entre aproximadamente 5 segundos y 30 minutos; en otra realización entre aproximadamente 5 segundos y 20 minutos; en otra realización entre aproximadamente 5 segundos y 15 minutos; en otra realización entre aproximadamente 5 segundos y 10 minutos; en otra realización entre aproximadamente 5 segundos y aproximadamente 5 minutos; en otra realización entre aproximadamente 5 segundos y aproximadamente 150 segundos; en otra realización entre aproximadamente 20 segundos y aproximadamente 120 segundos; en otra realización entre aproximadamente 25 segundos y aproximadamente 80 segundos; en otra realización entre aproximadamente 10 segundos y aproximadamente 40 segundos. Sin embargo, se sobrentiende que con la presente invención se pueden utilizar períodos de tiempo más largos que los intervalos de tiempo anteriormente indicados.

#### Materiales activos líquidos

50 Los materiales activos líquidos de la presente invención incluyen materiales volátiles, materiales no volátiles, y combinaciones de los mismos. Los materiales activos líquidos de la presente invención fluyen fácilmente a temperaturas de entre aproximadamente 10 °C y aproximadamente 30 °C. Los materiales activos líquidos se pueden generar en varias instalaciones, que incluyen, aunque no de forma limitativa, habitaciones, casas, hospitales, oficinas, teatros, edificios, y similares, o en varios vehículos como trenes, metros, automóviles, aviones, al aire libre y similares. Los materiales volátiles de interés en la presente memoria pueden estar en cualquier forma adecuada incluyendo de forma no excluyente: dispersión de sólidos, emulsiones, líquidos, y combinaciones de los mismos. Por ejemplo, el sistema de suministro puede contener un material volátil que comprende una composición monofásica, una composición multifásica y combinaciones de las mismas, de una o más fuentes en uno o más materiales portadores (p. ej., agua, disolventes, etc.).

También se contempla el uso de los materiales no volátiles, incluidos los sólidos, para ser utilizados con la presente invención. Se considera que cuando los materiales no volátiles forman parte del material activo líquido, los materiales no volátiles se dispersan en partículas diminutas en el aire que pueden al menos parcialmente ser transportadas por el aire.

5 Se sobrentiende que cuando las gotículas de materiales activos líquidos se describen en la presente memoria como que son “distribuidas”, “generadas” o “liberadas”, esto se refiere a la volatilización de los componentes que se evaporan de los materiales volátiles y a la liberación a la atmósfera de los componentes que no se evaporan, que pueden ser pequeños sólidos o partículas.

10 El término “sólidos”, tal y como se utiliza en la presente memoria, se refiere a un material que tiene una forma tangible o concreta como material discreto a temperatura ambiente (22 °C), es decir, que tiende a mantener su forma en lugar de fluir o propagarse como los líquidos o gases. Los sólidos se pueden disolver en las formulaciones o suspenderse completamente. Los sólidos pueden comportarse de un modo muy similar a las notas bajas ya que proporcionan profundidad y cuerpo a un perfume.

15 Los términos “materiales volátiles”, “aroma” y “fragancias”, tal y como se utilizan en la presente memoria, incluyen, aunque no de forma limitativa, olores agradables o aromáticos, y, por lo tanto, también abarcan aromas que funcionan como fragancias, desodorantes, eliminadores de los malos olores, contrarrestantes de los malos olores, insecticidas, repelentes para insectos, sustancias medicinales, ambientadores, desodorantes, aromacología, aromaterapia, o cualquier otro olor que actúe para acondicionar, modificar, o de otra manera cargar o modificar la atmósfera.

20 Además, el término “materiales volátiles” tal y como se utiliza en la presente memoria, se refiere a un material o unidad discreta que comprende uno o más materiales que se pueden vaporizar, o comprende un material que se puede vaporizar sin necesidad de utilizar una fuente de energía. Se puede utilizar cualquier material volátil adecuado en cualquier cantidad o forma. El término “materiales volátiles” incluye, aunque no de forma limitativa, composiciones que están compuestas en su totalidad por un único material volátil. Se sobrentiende que el término “material volátil” también se refiere a composiciones que tienen más de un componente volátil, y no es necesario que todos los materiales constituyentes del material volátil sean volátiles. Los materiales volátiles descritos en la presente memoria podrían, por lo  
25 tanto, tener también componentes no volátiles.

El material volátil puede comprender un perfume, aunque la invención no está tan limitada. Un perfume puede incluir una sustancia química aromática individual o una mezcla de sustancias químicas aromáticas. Tal y como se utiliza en la presente memoria, sustancias químicas aromáticas significa sustancias químicas que tienen un olor. Hay varias clases de sustancias químicas que se encuentran dentro de las sustancias químicas aromáticas, incluyendo de forma no  
30 excluyente iononas, hidrocarburos, alcoholes, aldehídos, ketones, ésteres, etc.

El término “fragancia” o “perfume” se refiere a todas las sustancias orgánicas que tienen una propiedad olfativa deseada y prácticamente no son tóxicas. Pueden ser compuestos de origen natural, semisintético o sintético. Una fragancia puede ser una combinación de varias sustancias odoríferas que se evaporan a diferentes velocidades y/o durante diferentes períodos. La fragancia puede exhibir lo que se conoce como una “nota alta,” que puede ser el olor que se difunde  
35 primero cuando se aplica la fragancia, generado o liberado a la atmósfera, una “nota central o “nota media,” que puede completar o complementar la fragancia proporcionando cuerpo y textura, y una “nota baja,” que puede ser el olor más persistente y que se puede percibir varias horas después de la aplicación o emisión.

Para ser perceptible, un perfume tiene que ser volátil, su peso molecular es un factor importante junto con la naturaleza de los grupos funcionales y la estructura del compuesto químico. Por lo tanto, la mayoría de perfumes tienen pesos  
40 moleculares de hasta aproximadamente 200 daltons, y los pesos moleculares de 300 daltons y superiores son más la excepción. En vista de las diferencias en la volatilidad de los perfumes, el olor de un perfume o fragancia compuesto de varios perfumes cambia durante el proceso de evaporación, las impresiones olfativas se dividen en una nota alta, una nota media o cuerpo y la nota baja.

45 Puesto que la percepción olfativa también se basa en gran medida en la intensidad del olor, es posible que la nota alta de un perfume o fragancia no se componga únicamente de compuestos fácilmente volátiles. La nota baja puede consistir en su mayor parte en perfumes menos volátiles, es decir, que se adhieren firmemente. En la composición de perfumes, es posible que se fijen los perfumes más fácilmente volátiles, por ejemplo, a determinados “fijadores”, lo que evita que se vaporicen demasiado rápidamente. El perfume también puede contener pequeñas cantidades de otros aditivos, como disolventes, conservantes, antioxidantes, agentes de filtrado ultravioleta y similares. La matriz de la fragancia también  
50 puede incluir componentes organolépticos, como por ejemplo, otros ingredientes con fragancias bien conocidas.

Las fragancias o perfumes pueden incluir aceites naturales y/o sintéticos, extractos y/o esencias que pueden comprender mezclas complejas de constituyentes, como aceite de naranja, aceite de limón, extracto de rosas, lavanda, almizcle, pachuli, esencia balsámica, aceite de sándalo, aceite de pino y aceite de cedro.

55 Un término útil para cuantificar el grado de volatilidad de los materiales volátiles es el índice de Kovat. El índice de Kovat (KI, o índice de retención) se puede definir por la retención selectiva de solutos o materias primas de perfume (PRM) en las columnas cromatográficas. Se determina principalmente por la fase estacionaria de la columna y las propiedades de los solutos o PRM. Para un sistema de columna dado, la polaridad de las PRM, el peso molecular, la presión de vapor, el

punto de ebullición y la propiedad de la fase estacionaria determinan el alcance de la retención. Para expresar sistemáticamente la retención de analito en una columna GC determinada, se define una medida denominada índice de Kovat. El índice de Kovat coloca los atributos de volatilidad de un analito (o PRM) en una columna en relación con las características de volatilidad de una serie de n-alcano en esa columna. Las columnas típicas utilizadas son DB-5 y DB-1.

- 5 Mediante esta definición el KI de un alcano normal puede establecerse en  $100n$ , donde  $n$  = número de átomos C del n-alcano. Con esta definición, el índice de Kovat de una PRM,  $x$ , eluyendo en el tiempo  $t'$ , entre dos n-alcacos con el número de átomos de carbono  $n$  y  $N$  que tienen tiempos de retención corregidos  $t'_n$  y  $t'_N$  respectivamente se calculará del modo siguiente:

$$KI = 100x \left( n + \frac{\log t'_x - \log t'_n}{\log t'_N - \log t'_n} \right) (1)$$

- 10 Esta ecuación se puede utilizar para calcular el índice de Kovat para cualquier material volátil. Además, esta ecuación se puede utilizar para separar todavía más los componentes volátiles en tres categorías; notas altas, medias y bajas. Si se utiliza el índice de Kovat, una nota alta puede tener un KI inferior o igual a 1200, una nota media entre 1200 y 1400, y una nota baja superior o igual a 1400. Por ejemplo, una formulación de perfume típica que tenga un 2 por ciento de sólidos puede comprender un 70 por ciento de notas altas, un 20 por ciento de notas medias, y un 10 por ciento de notas
- 15 bajas. Una formulación comparable que tenga aproximadamente 3 por ciento de sólidos puede comprender de aproximadamente 40 por ciento a aproximadamente 60 por ciento, especialmente aproximadamente 50 por ciento de notas altas; de aproximadamente 20 por ciento a aproximadamente 40 por ciento, especialmente aproximadamente 30 por ciento de notas medias; y de aproximadamente 10 por ciento a aproximadamente 30 por ciento, especialmente aproximadamente 20 por ciento de notas bajas.

#### 20 Sistema de suministro

- Por lo que respecta a las Figuras 1 y 2, se muestra un sistema 1 de suministro ilustrativo y no limitativo. El sistema 1 de suministro incluye un depósito líquido 4, que contiene un material activo líquido para ser atomizado, que se puede yuxtaponer con el transductor electromecánico 3 y montarlo debajo y un elemento 2 generador de gotículas. El componente 5 de suministro de líquido se puede extender hacia arriba desde dentro del depósito 4 a la cara trasera del elemento 2 generador de gotículas o a una región en comunicación de fluidos con el elemento 2 generador de gotículas.
- 25 Al activarse el transductor electromecánico 3, el material activo líquido se genera a través del elemento 2 generador de gotículas, el orificio 10, y a la atmósfera.

- El depósito 4 puede comprender cualquier recipiente hermético a los líquidos adecuado para contener una cantidad apropiada de los materiales activos líquidos que se van a dispensar. El depósito 4 se puede presurizar para proporcionar el suministro de los materiales activos líquidos al elemento 2 generador de gotículas, o se puede mantener a presión atmosférica. Al vaciar el depósito 4, el depósito 4 se puede volver a llenar con material activo líquido que se proporciona de un suministro en grandes cantidades o el depósito 4 se puede reemplazar con un nuevo depósito que contiene una cantidad de material activo líquido.
- 30

- Los materiales activos líquidos se pueden suministrar a un elemento 2 generador de gotículas mediante un componente 5 de suministro de líquidos que funcione mediante alimentación por gravedad, acción capilar, acción de bombeo, etc. Cuando el elemento 2 generador de gotículas es una estructura perforada, el componente 5 de suministro de líquidos se puede eliminar cerca del centro del elemento 2 generador de gotículas, de modo que el componente 5 de suministro de líquidos puede entrar en contacto con las perforaciones 2a, 2b, 2c del elemento 8 generador de gotículas. Sin embargo, el componente 5 de suministro de líquidos no es necesario que entre en contacto con las perforaciones 2a, 2b, 2c y las perforaciones 2a, 2b, 2c se pueden desplazar lateralmente del componente 5 de suministro de líquidos.
- 35
- 40

- Es deseable que se produzca una alimentación continua del material activo líquido del depósito 4 al elemento 2 generador de gotículas. La alimentación continua se puede conseguir utilizando un componente 5 de suministro de líquidos, que puede comprender un tubo de alimentación que suministre un material activo líquido a la cara trasera del elemento 2 generador de gotículas o a una posición yuxtapuesta con la cara trasera del elemento 2 generador de gotículas. La cara trasera del elemento 2 generador de gotículas es la cara opuesta desde la que emergen las gotículas. Los materiales activos líquidos se pueden suministrar desde el depósito 4 a una cara del elemento 2 generador de gotículas mediante una alimentación capilar. La alimentación capilar puede ser flexible y tener una superficie o unidad de superficies sobre la que el material activo líquido puede pasar desde el depósito 4 hacia el elemento 2 generador de gotículas. Las formas de material capilar ilustrativo incluyen espumas de celdas abiertas, mechas fibrosas, mecha de plástico poroso y tubos capilares poliméricos o de vidrio.
- 45
- 50

En aplicaciones donde se desean unas tasas relativamente altas de producción de gotículas y/o un porcentaje relativamente alto de sólidos, se puede suministrar la alimentación capilar mediante una estructura relativamente abierta,

que también puede ser relativamente rígida. Esta disposición puede proporcionar la ventaja de un área relativamente grande sin restricción para el flujo del líquido para un área superficial determinada en la pared del tubo capilar. En dicho proceso de transferencia de líquidos, el área entre las superficies de materiales capilares a través de las cuales puede fluir el líquido a las superficies capilares, es decir, el volumen líquido es relativamente grande con respecto al área superficial de las superficies capilares. Esta geometría puede proporcionar un proceso de transferencia de líquidos que es menos restrictiva que un proceso de transferencia similar utilizando una mecha capilar porosa. Sin pretender imponer ninguna teoría, se considera que un capilar de tubo abierto puede minimizar la interacción entre los medios porosos del sistema capilar y los sólidos dispersados, de modo que permite que los sólidos se generen con las gotículas como parte del líquido a granel con una mínima separación de líquido a sólido. El tubo capilar abierto puede tener una velocidad de descarga de al menos aproximadamente 20 mg/hora, aproximadamente 30 mg/hora o aproximadamente 40 mg/hora, aunque de forma típica no tiene más de aproximadamente 80 mg/hora, aproximadamente 70 mg/hora, aproximadamente 60 mg/hora o aproximadamente 50 mg/hora.

El tubo capilar puede tener una sección transversal cerrada, como un círculo. De forma alternativa, la sección transversal cerrada puede no ser circular, como un óvalo, cuadrado, etc. de forma alternativa, el tubo capilar abierto puede comprender un canal abierto, como un vertedero, etc. El tubo capilar puede ser rígido y fabricado con vidrio, materiales poliméricos, etc.

Además, en aplicaciones donde se desean índices de producción de gotículas en el intervalo de 1 mg/s o más, los capilares de canal plano pueden ofrecer la ventaja de una velocidad de descarga relativamente superior con un diseño simple y facilidad de fabricación. Cuando se utiliza un diseño de canal plano se debe tener en cuenta la altura del capilar, ya que el arrastre y la tirada en un canal capilar plano es la mitad de la de un tubo capilar, lo que da como resultado sólo la mitad del ascenso capilar en comparación con un tubo cerrado.

Si se desea, se pueden utilizar tubos capilares plurales en paralelo para transportar líquido del depósito al accionador. Si se utilizan tubos capilares plurales, los tubos capilares pueden tener una longitud igual o desigual, un área transversal, una forma transversal, longitud, velocidad de descarga, etc. Los tubos capilares pueden tener un origen común o diferente dentro del depósito. De forma alternativa, los tubos capilares plurales se pueden utilizar para suministrar un número similar de líquidos plurales desde depósitos separados a una estructura perforada común. Esta disposición proporciona la ventaja de que se pueden mantener separados materiales incompatibles, en depósitos discretos, hasta que se dispensen estos materiales en el momento de ser utilizados. Los materiales plurales se pueden suministrar desde sus respectivos depósitos a la estructura perforada al mismo caudal o a un caudal diferente.

En otra realización alternativa que tiene depósitos plurales, se pueden utilizar y hacer funcionar en paralelo los transductores plurales y un número similar de estructuras perforadas plurales. Esta disposición proporciona la ventaja de que no se produce la mezcla de materiales separados hasta que los materiales se dispensan en la atmósfera. De nuevo, los materiales se pueden dispensar a un caudal común o a caudales diferentes. Si es así, los depósitos plurales, los transductores, las placas perforadas, etc., pueden ser las mismas o pueden diferir en función y/o en rendimiento.

El sistema 1 de suministro comprende un transductor electromecánico 3, que es un elemento capaz de convertir la energía eléctrica en energía mecánica. Un ejemplo conocido de un transductor electromecánico 3 comprende materiales piezoeléctricos, que tienen la capacidad de cambiar de forma cuando son sometidos a una tensión aplicada externamente. La tensión puede producir que el transductor electromecánico 3 vibre a determinadas frecuencias. El transductor electromecánico 3 se puede accionar con una tensión oscilante en una de las frecuencias resonantes del sistema o de forma alternativa con una forma de onda que da a la gotícula un funcionamiento bajo demanda. La tensión oscilante puede producir una vibración en el transductor. La vibración a su vez, puede generar gotículas de material activo líquido a través de un elemento 2 generador de gotículas, como una estructura perforada que está asociada operativamente con el transductor electromecánico 3. Las gotículas de material activo líquido, a continuación, se distribuyen a la atmósfera. Se considera que se puede inducir una diferencia de presión resultante en el líquido directamente detrás de una estructura perforada. La diferencia de presión resultante puede impulsar el líquido a través de las perforaciones de una estructura perforada para formar gotículas.

El transductor electromecánico 3 puede comprender un material piezoeléctrico, que vibra a una frecuencia de resonancia bajo una tensión aplicada externamente. El transductor electromecánico 3 puede comprender varios modelos y formas, como un disco redondo. Un transductor en forma de disco puede tener dos caras opuestas. Un electrodo separado se puede disponer en cada cara y ser polarizado radialmente. Los electrodos pueden estimular los modos de longitud del transductor en forma de disco o un modo de una estructura perforada.

Los electrodos pueden tener un diseño que incorpore electrodos de “accionamiento” y “detección”. Los electrodos de accionamiento y detección están aislados electrónicamente pero acoplados mecánicamente a través de un transductor piezoeléctrico. Se puede aplicar una tensión de accionamiento al electrodo de accionamiento. El movimiento resultante en el transductor genera una tensión en el electrodo de detección. Esta tensión se puede supervisar, a continuación, y utilizar para controlar la tensión de accionamiento a través de un circuito de retroalimentación. La respuesta eléctrica se puede utilizar para ajustar la tensión con el fin de conseguir resonancias específicas o bien mediante bloqueo de fase, maximización de la amplitud u otros medios conocidos. Para maximizar el acoplamiento electromecánico al modo deseado puede ser útil dar forma al electrodo de accionamiento de forma apropiada.

La vibración inducida puede tener una amplitud y fase inducidas en relación con las características de la señal de accionamiento. Si lo desea, la tensión de accionamiento puede barrer varias frecuencias con el fin de proporcionar un intervalo de características de despacho. De forma alternativa, la tensión de accionamiento puede estimular al transductor a una frecuencia única. La frecuencia única puede coincidir o encontrarse cerca de la frecuencia natural del transductor o un armónico del mismo. Esta disposición puede proporcionar la ventaja de que se consume menos potencia que utilizando un barrido de múltiples frecuencias sobre un espectro.

También puede ser útil incorporar un electrodo de detección en el sistema 1 de suministro. Un electrodo de detección puede dar información de fase y amplitud que permite que un circuito electrónico apropiado bloquee el modo de resonancia correcto. Puede ser ventajoso dar forma a los electrodos de detección de modo que se pueda conseguir un acoplamiento electromecánico apropiado.

En las Figuras 3 y 4 se muestra una realización del transductor electromecánico 3. En esta realización, el transductor electromecánico 3 puede tener un diámetro de aproximadamente 10 milímetros a aproximadamente 50 milímetros. En algunas realizaciones el diámetro puede ser inferior a aproximadamente 25 milímetros, inferior a aproximadamente 20 milímetros, o puede ser de aproximadamente 15 milímetros o menos. El transductor electromecánico 3 puede tener un orificio ubicado en el centro a través del mismo. El orificio puede tener un diámetro de aproximadamente 5 milímetros a aproximadamente 15 milímetros. El transductor electromecánico 3 puede ser plano y vibrar en un modo curvado, modo de expansión o una combinación de los mismos con una desviación principal generalmente perpendicular a las caras opuestas del transductor. La curvatura puede ser bilateral o unilateral. Un transductor piezoeléctrico adecuado se describe en la patente US-5.518.179.

El elemento 2 generador de gotículas puede estar formado por diversos materiales, entre los que se incluye níquel electroformado, silicio grabado, acero inoxidable o plásticos. El elemento 2 generador de gotículas puede ser flexible o rígido. Un diseño flexible es uno donde las amplitudes de los modos vibratorios del elemento 2 generador de gotículas son grandes comparados con los del transductor electromecánico 3. El movimiento resultante puede tener una repercusión significativa en el proceso de generación de gotículas. Un diseño rígido es el que las amplitudes de los modos vibratorios de la estructura perforada son generalmente iguales o más pequeños que los del transductor electromecánico. Este movimiento sigue generalmente el movimiento del transductor electromecánico. En cualquiera de estos diseños, la flexibilidad se puede controlar seleccionando el material y el espesor. La ventaja del diseño rígido es que un elemento generador de gotículas rígido puede generar gotículas uniformes a través de su superficie sin amortiguar el movimiento global del elemento generador de gotículas.

El elemento 2 generador de gotículas está asociado operativamente al transductor electromecánico 3. "Asociado operativamente" significa que el elemento generador de gotículas responde a la activación del transductor electromecánico 3 de modo que el material activo líquido pasa a través del elemento 2 generador de gotículas para su difusión a la atmósfera. En una realización, el elemento 2 generador de gotículas está asociado operativamente con el transductor electromecánico 3 al estar unido o acoplado a una cara del transductor electromecánico 3 mediante un adhesivo, soldadura, etc. Un ejemplo de transductor electromecánico 3 acoplado y no limitativo, se muestra en la Figura 4. El elemento 2 generador de gotículas también se puede desacoplar del transductor electromecánico 3 y, aún así, seguir estando operativamente asociado con el transductor 3. Un transductor electromecánico desacoplado adecuado se describe en WO 02/068128.

El elemento 2 generador de gotículas es una estructura perforada, como se muestra en las Figuras 3 y 4, que comprende varias perforaciones 2a, 2b, 2c dispuestas en un diseño, como por ejemplo una red hexagonal. Se ha descubierto que estructurar el elemento generador de gotículas para maximizar el caudal del material activo líquido mientras se minimiza la deposición, mejora la intensidad percibida de la formulación activa líquida.

El tamaño de las gotículas se puede determinar variando el área transversal de la salida de las perforaciones 2a, 2b, 2c. Las perforaciones redondas 2a, 2b, 2c tienen un diámetro de aproximadamente 4 micrómetros a aproximadamente 7 micrómetros. En una realización que no forma parte de la invención, el diámetro de las perforaciones 2a, 2b, 2c puede ser inferior a aproximadamente 30 micrómetros. En otra realización que no forma parte de la invención, el diámetro de las perforaciones 2a, 2b, 2c puede ser inferior a aproximadamente 15 micrómetros.

Las perforaciones 2a, 2b, 2c pueden estar ahusadas para tener una reducción en el área transversal en la dirección del caudal. Si se selecciona una estructura perforada que tiene las perforaciones 2a, 2b, 2c de una sección transversal variable, el área transversal de las perforaciones 2a, 2b, 2c puede disminuir desde la cara trasera a la cara delantera de la estructura perforada. Dicha perforación ahusada puede reducir la amplitud de vibración de la estructura perforada que es necesaria para producir gotículas de un tamaño determinado, debido a la reducción de resistencia de viscosidad sobre el líquido cuando pasa a través de dichas perforaciones 2a, 2b, 2c. Por consiguiente, se puede utilizar una estimulación relativamente más baja del transductor electromecánico 3, proporcionando de este modo una eficacia mejorada en la creación de las gotículas que se dispensarán. En el caso de un transductor electromecánico acoplado y una estructura perforada, la estimulación relativamente inferior puede permitir el uso de una estructura perforada relativamente gruesa y robusta desde la que se puede conseguir una producción de gotículas satisfactoria. Esto también puede proporcionar la creación de gotículas de líquidos de viscosidad relativamente alta y puede reducir las tensiones mecánicas en la estructura perforada. En el caso de un transductor electromecánico desacoplado y una estructura perforada, la reducción

de la resistencia de viscosidad también dará como resultado una eficiencia mejorada con respecto a la potencia que es necesaria para generar las gotículas.

5 El elemento 2 generador de gotículas también puede ser una estructura no perforada. Por ejemplo, el material activo líquido se alimenta en una cara del elemento 2 generador de gotículas que se encuentra enfrente de la cara posterior. Las gotículas se generan mediante la vibración del elemento 2 generador de gotículas ya sea mediante una curvatura, expansión, bilateral o unilateral.

10 El sistema 1 de suministro puede tener una primera parte desechable que comprende el líquido y su recipiente o depósito 4 de líquido. La segunda parte, se puede volver a utilizar y puede comprender el transductor electromecánico 3, el elemento 2 generador de gotículas con sus componentes electrónicos 9 de accionamiento asociados y una fuente 8 de alimentación. Esto proporciona un sistema que se puede volver a llenar. De forma alternativa, el sistema se puede desechar tras el vaciado del depósito.

El sistema de suministro se puede hacer funcionar desde cualquier fuente 8 de alimentación adecuada. La fuente 8 de alimentación puede ser una batería, la energía eléctrica de una toma de pared, conversión fotovoltaica solar, etc.

15 El sistema de suministro puede también comprender un interruptor automático, como es conocido en la técnica. El interruptor automático puede activar o desactivar el sistema de suministro cuando una cantidad de umbral de energía está o no presente. Por ejemplo, el interruptor automático puede comprender una célula fotoeléctrica. La célula fotoeléctrica puede producir que el sistema de suministro se apague cuando no haya una cantidad umbral de luz. Esto permite que el sistema de suministro se apague por la noche, en caso de que no haya nadie presente durante la noche. La célula fotoeléctrica puede apagar o bien el ventilador, el transductor electromecánico, o ambos. De forma alternativa, el sistema de suministro, el transductor y/o el ventilador se pueden activar o desactivar por la presencia o ausencia de sonido, movimiento, calor u otras formas de energía.

25 El sistema 1 de suministro puede también comprender un controlador 9 de intensidad para controlar la cantidad de material activo líquido que se dispensa a la atmósfera. El sistema 1 de suministro también puede incluir un controlador 8 de refuerzo para proporcionar ráfagas de material activo líquido más allá de la cantidad que se dispensa normalmente desde el sistema 1 de suministro. En otra realización se puede utilizar un calentador para ayudar y acelerar la volatilización de los materiales activos líquidos.

30 El sistema 1 de entrega puede también comprender una fuente de luz. Las fuentes de luz adecuadas incluyen, aunque no de forma limitativa, diodos generadores de luz ("LED"), fuentes de luz incandescentes incluyendo de forma no excluyente bombillas con una base de filamentos, y fuentes de luz luminiscentes incluyendo de forma no excluyente materiales electroluminiscentes, quimioluminiscentes, catodoluminiscentes, triboluminiscentes, y fotoluminiscentes. En una realización no limitativa la fuente de luz es uno o más LED. El LED puede ser de cualquier número de colores incluyendo de forma no excluyente amarillo, blanco, rojo, verde, azul, rosa, o una combinación de los mismos. Un ejemplo no limitativo de un LED adecuado para usar con la presente invención es el n.º de pieza MV8305 (comercializado por Fairchild Semiconductor de South Portland, Maine, EE. UU.).

35 En una realización no limitativa, la luz se coloca en el sistema 1 de suministro de modo que la luz se dirija hacia el depósito 4. Se puede diseñar de tal modo que la luz se encienda automáticamente cuando se encienda el sistema 1 de suministro o se puede diseñar de modo que la luz se controle de forma separada del funcionamiento del sistema 1 de suministro. Si lo desea, la fuente de luz se puede conectar a un temporizador incorporado al sistema 1 de suministro de modo que la luz se apague automáticamente después de un período de tiempo predeterminado. También, si lo desea, la fuente de luz puede proporcionar una luz que varía en intensidad. En otra realización, el método de distribuir un material activo líquido en la atmósfera comprende además proporcionar una cantidad de un segundo líquido; (a) proporcionar un transductor electromecánico (3) que se comuniquen con dicho segundo líquido; (b) activar dicho transductor electromecánico (3) para distribuir dicho segundo líquido a dicha atmósfera; y llevar a cabo dicha activación por un período de tiempo alterno de al menos 20 milisegundos. En una realización, dicho material activo líquido se distribuye a dicha atmósfera durante un primer período de tiempo y dicho segundo líquido se distribuye a dicha atmósfera durante dicho período alterno, dicho primer período y dicho período alterno son diferentes.

Los siguientes ejemplos se presentan con fines ilustrativos y, de ninguna forma, está previsto que limiten el alcance de la invención.

### Ejemplo 1

50 El Ejemplo 1 compara el efecto de la longitud del período de activación en la intensidad percibida utilizando un sistema de suministro piezoeléctrico según el siguiente método de evaluación sensorial para aparatos o sistemas de suministro.

55 Se utiliza una sala de evaluación de olores dedicada para todas las evaluaciones sensoriales. Un evaluador de olores cualificado verifica que no hay ningún perfume residual ni ningún olor en la habitación. Las puertas de la habitación están cerradas y la persona que realiza la prueba activa el aparato o el sistema de suministro. Los evaluadores de olores cualificados entran en la sala de evaluación de olores y realizan las evaluaciones de olores en los siguientes intervalos de tiempo: (1) 3 minutos después de la activación (2) 6 minutos después de la activación (3) 12 minutos después de la



activación y (4) 18 minutos después de la activación. Las evaluaciones sensoriales se llevan a cabo en las siguientes distancias del sistema de suministro o aparato empezando por la distancia más alejada: (1) 0,9 metros (2) 1,8 metros y (3) 2,7 metros. Los evaluadores expertos salen de la habitación entre evaluaciones del olor y las puertas se cierran entre las evaluaciones del olor. Los evaluadores expertos proporcionan mediciones de la intensidad del olor en una escala de puntuación sensorial de 0 a 5.

5 Escala de intensidad del perfume:

5 = muy fuerte, es decir, extremadamente intenso, penetra en la nariz, casi se puede saborear

4 = fuerte, es decir, llena mucho la habitación, pero ligeramente intenso

3 = moderado, es decir, llena la habitación, el carácter del olor es claramente reconocible

10 2 = ligero, es decir, llena parte de la habitación, el carácter del olor es reconocible

1 = débil es decir, la difusión es limitada, el carácter del olor es difícil de describir,

0 = no hay aroma

15 En la Tabla 1 se muestran los datos hedónicos del perfume mejorados en todas las distancias desde el sistema de suministro cuando se aumenta la duración del tiempo de activación del transductor electromecánico a una velocidad de suministro constante. Esto se traduce para el consumidor en una mejor intensidad y carácter del perfume.

Tabla 1	Grado de intensidad del perfume a una distancia determinada desde el sistema de suministro		
	0,9 metros	1,8 metros	2,7 metros
Impulso corto (10 ms)	1,5	0,5	0,5
Impulso medio (15 ms)	2,0	1,5	1,5
Impulso más largo (60 ms)	2,5	2,5	2,0

Un período de activación más largo puede proporcionar una mayor intensidad un carácter del perfume más complejo y una presentación del perfume más persistente que un perfume homólogo que utilice un período de activación más corto.

20 **Ejemplo 2**

El Ejemplo 2 compara el efecto de los tiempos de pulsación con respecto al número de componentes detectables mediante el siguiente método, supervisión in situ de los componentes del perfume por GC/MS.

25 En este método, el sistema de suministro de la prueba se coloca en una habitación de 2,83 m<sup>3</sup> (100 pies<sup>3</sup>) con una circulación de la habitación estándar. Las muestras se recogen a 0,06 m, 0,91 m, 1,83 m y 2,74 m (0,2, 3, 6 y 9 pies). Por cada punto de tiempo se toma una muestra en cada posición. Se toma una muestra inicial del ambiente de la habitación. El sistema de suministro se coloca en la habitación y se activa. Después de esto, se recogen las muestras al inicio y transcurridos 6, 12 y 18 minutos. Las muestras de aire se recogen utilizando 4 bombas individuales para muestreo de aire Gil Air que recogen muestras durante 3 minutos a 1 l/min. Las muestras se recogen en separadores TA Tenax de 30 50 mg y se desorben utilizando un MPS-2 TDU en un sistema GC/MS. Las muestras se analizan utilizando un GC/MS 6890/5973 con una columna DB-1 (espesor de película: 1 µm, diámetro interior: 0,32 mm, longitud: 60 m). Se presentan los datos con respecto al número de componentes detectables además de a la respuesta del detector de ionización por llama (FID).

35 La Tabla 2 muestra un mayor número de componentes detectables en todas las distancias medidas desde el sistema de suministro en la muestra de 18 minutos cuando se utiliza un tiempo de pulsación más largo. Sorprendentemente el tiempo de pulsación más largo produjo componentes significativamente más detectables incluso en el área directamente junto al sistema de suministro. Se observan tendencias similares en las otras mediciones de tiempo.

Tabla 2	Grado de intensidad del perfume a una distancia determinada desde el sistema de suministro			
	0,06 m (0,2 pies)	0,91 m (3 pies)	1,83 m (6 pies)	2,74 m (9 pies)

Impulso corto (10 ms)	7	7	6	7
Impulso largo (60 ms)	22	17	14	12

**Ejemplo 3**

5 En el Ejemplo 3 se comparan los diversos tamaños de perforación del elemento generador de gotículas y su efecto en la deposición y el caudal. Para mejorar la intensidad percibida del material activo líquido, se puede maximizar el caudal mientras que se minimiza la deposición. En este ejemplo, el sistema de suministro proporciona una deposición inferior a aproximadamente 6 µg y un caudal en el intervalo de aproximadamente 30 mg/hora y superior.

Los caudales se miden como pérdida de peso a lo largo del tiempo. El peso del sistema de suministro se mide utilizando una respuesta Mettler Toledo Excellence Xs403S de 0,001 g a lo largo del tiempo y la diferencia de peso (en mg) se divide por el período de tiempo en horas para dar un caudal en mg/hora.

10 La altura de la pluma se determina colocando un sistema de suministro en el centro de una cámara cilíndrica. En la parte trasera de la cámara, detrás del sistema de suministro se proporciona una pantalla oscurecida. Se coloca una regla de modo que la marca de cero cm esté directamente en línea con la parte superior del sistema de suministro. La distancia vertical de la pluma que se alcanza se mide con la regla y se toma la altura media de la pluma en cm de cinco pulverizaciones consecutivas.

15 La deposición se determina recogiendo los materiales activos líquidos no volatizados o que se han vuelto a depositar en tres papeles de filtro, Whatman 40 (Ashless, 18,5 cm, número de catálogo: 1440 185). Dos de los papeles de filtro se colocan debajo del borde inferior del sistema de suministro. El tercer papel de filtro se corta para que se ajuste a la parte superior del sistema de suministro y se coloca con el orificio recortado sobre el centro del sistema de suministro. El sistema de suministro se coloca en una habitación y se ejecuta durante un período de 17 a 18 horas. Los papeles del filtro se extraen utilizando 5 ml de una solución disolvente de patrón interno que contiene 11,4 mg de C14 en 250 ml de metanol. Todas las muestras se analizan inyectando 1 microlitro en un 6890/5973 GC/MS con una columna DB-1 (espesor de película: 1 µm, diámetro interior: 0,32 mm, longitud: 60 m). Los resultados cuantitativos se calculan tomando como referencia un estándar conocido.

25 Las distribuciones del tamaño de una gotícula se miden utilizando un sistema Visisizer de Oxford Laser. Esta técnica utiliza fotografía digital de alta resolución y alta velocidad para obtener imágenes de la pulverización. La luz láser se difunde y se utiliza como una luz trasera (no un haz); el volumen de la muestra es de aproximadamente un 1 mm<sup>3</sup>. A continuación, estas imágenes se analizan con el software Visisizer para producir una distribución del tamaño de las gotículas. Las distribuciones medidas aparecen más aproximadas que las distribuciones medidas con otras técnicas (como la difracción láser) ya que este método en realidad cuenta y calibra partículas individuales. A continuación, se calculan los análisis estadísticos de los pulverizadores relevantes a partir de los datos en bruto del tamaño de las gotículas. En la mayoría de los casos, se utilizan al menos 2000 gotículas para calcular los análisis estadísticos.

30 La Tabla 3 ilustra que un tamaño de perforación de aproximadamente 5 micrómetros a aproximadamente 7 micrómetros maximiza el caudal y minimiza la deposición

Tabla 3

35

Período de activación (ms)	Período de desactivación (ms)	Tamaño de la perforación (µm)	Tamaño de la gotícula (µm)	Altura de la pluma (cm)	Deposición (µg)	Caudal (mg/hora)
15	10	4,5	6,5	7	6	10
45	10	8	11,80	10	X	42
60	2,5	4,5	7,40	8	3	35
60	5	5,6	7,84	9	4	34
60	10	7	11,00	10	4	32
60	10	8	11,90	11	12	45
75	10	8	12,30	12,5	13	47
100	2,5	4,5	6,70	9,5	3	33

5 Las magnitudes y los valores descritos en la presente memoria no deben entenderse como estrictamente limitados a los valores numéricos exactos mencionados. Por el contrario, salvo que se indique lo contrario, cada una de estas magnitudes significa tanto el valor mencionado como un rango de valores funcionalmente equivalente alrededor de este valor. Por ejemplo, una magnitud descrita como “40 mm” significa “aproximadamente 40 mm”.

Aunque se han ilustrado y descrito determinadas realizaciones de la presente invención, sería obvio para todos aquellos expertos en la técnica que se pueden realizar otros cambios y modificaciones diversas sin abandonar el ámbito de la invención definida por las reivindicaciones que se adjuntan a continuación.

**REIVINDICACIONES**

1. Un método para distribuir un material activo líquido a una atmósfera, comprendiendo dicho método las etapas de:
  - (a) proporcionar una cantidad de dicho material activo líquido;
  - (b) proporcionar un transductor electromecánico (3) que se comunique con dicho material activo líquido;
  - 5 (c) activar dicho transductor electromecánico (3) para distribuir dicho líquido a dicha atmósfera; y
  - (d) llevar a cabo dicha activación durante un primer período de tiempo de entre 60 y 500 milisegundos, en el que dicho transductor electromecánico está acoplado o desacoplado a una estructura perforada que tiene una pluralidad de perforaciones (2a, 2b, 2c), teniendo dichas perforaciones un diámetro de 4 micrómetros a 7 micrómetros.
2. Un método según la reivindicación 1, que comprende además proporcionar una cantidad de un segundo líquido;
  - 10 (a) proporcionar un transductor electromecánico (3) que se comunique con dicho segundo líquido;
  - (b) activar dicho transductor electromecánico (3) para distribuir dicho segundo líquido a dicha atmósfera; y llevar a cabo dicha activación para un período de tiempo alterno de al menos 20 milisegundos.
3. Un método según la reivindicación 2, en el que el material activo líquido se distribuye a dicha atmósfera durante un primer período de tiempo y dicho segundo líquido se distribuye a dicha atmósfera durante dicho período alterno, siendo dicho primer período y dicho período alterno diferentes.  
15

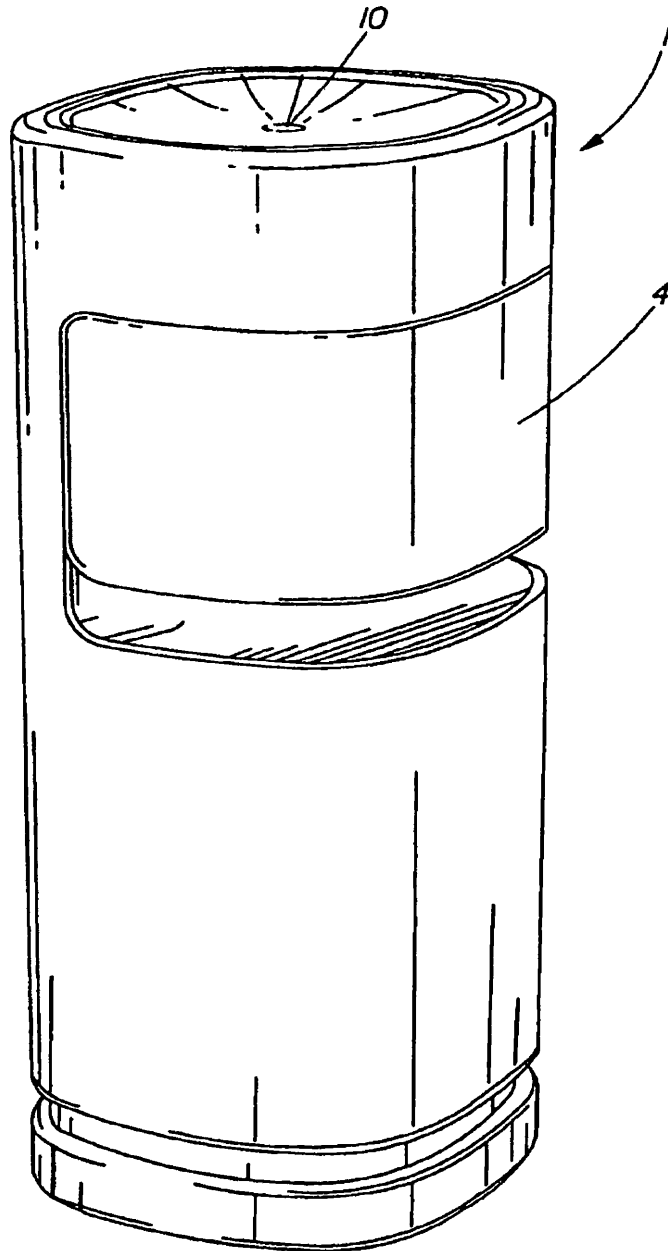


Fig. 1

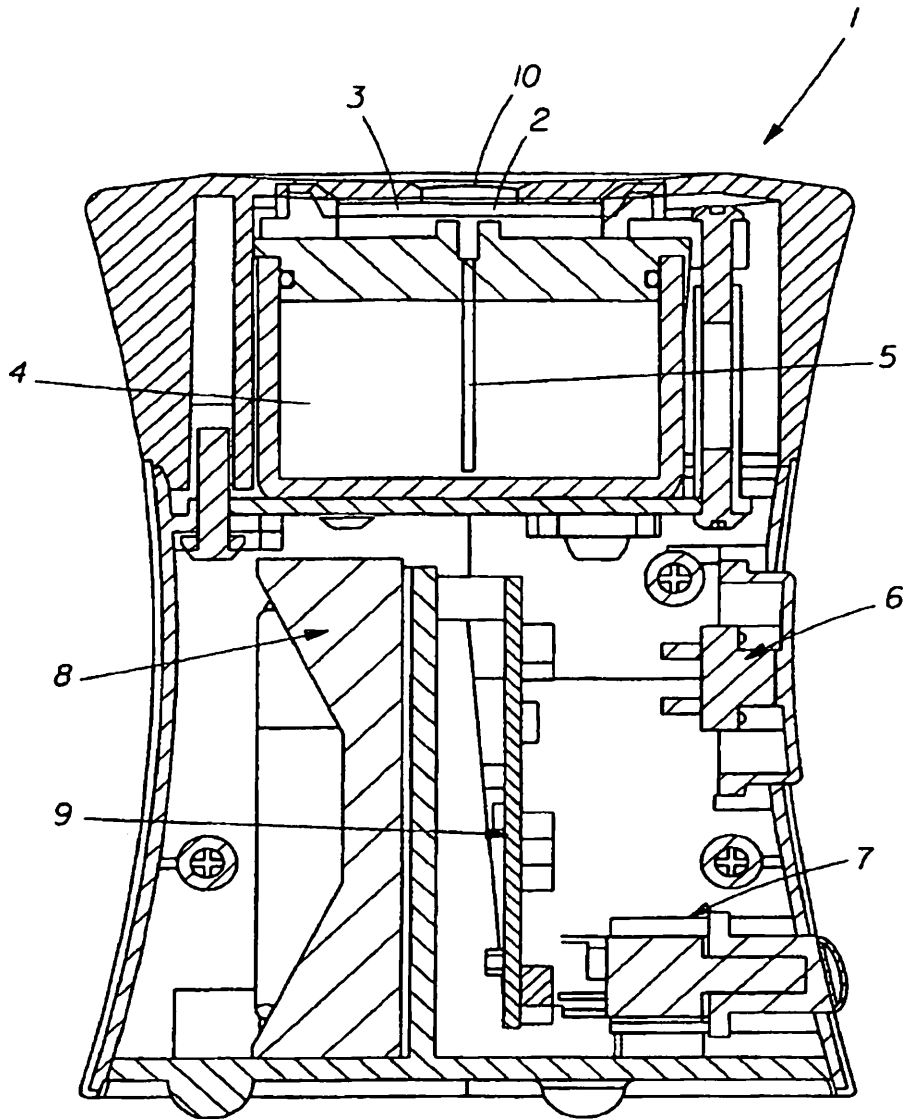


Fig. 2

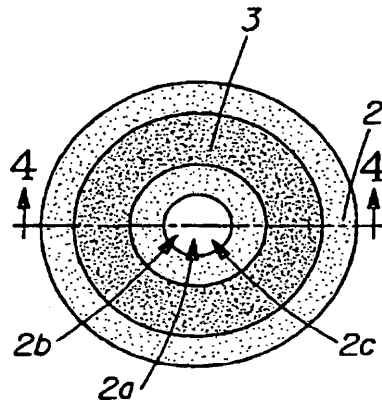


Fig. 3

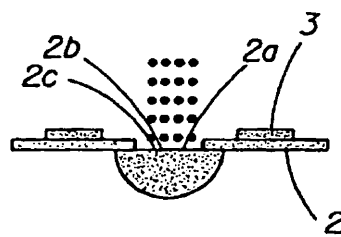


Fig. 4