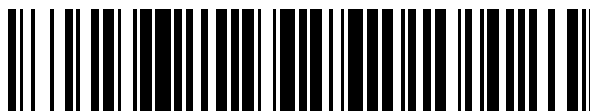


19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 394 219**

51 Int. Cl.:

**C08K 7/24** (2006.01)

**C08L 83/04** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **03.10.2006 E 06804566 (5)**

97 Fecha y número de publicación de la • [ ~~3a~~ ] a europea: \*\*\*\*\***09.07.2008**\*\*\*\*\***EP 1940939**

54 Título: **Composición resistente al fuego**

30 Prioridad:

**28.10.2005 US 731008 P**

**28.10.2005 US 731363 P**

**06.03.2006 US 780022 P**

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

**23.01.2013**

73 Titular/es:

**NANOCYL S.A. (100.0%)**

**RUE DE L'ESSOR 4**

**5060 SAMBREVILLE, BE**

72 Inventor/es:

**ALEXANDRE, MICHÄEL;**

**DUBOIS, PHILIPPE;**

**DEVALCKENAERE, MYRIAM y**

**CLAES, MICHÄEL**

74 Agente/Representante:

**CURELL AGUILÁ, Mireia**

**ES 2 394 219 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**

Composición resistente al fuego.

**Objeto de la invención**

5 La presente invención se refiere a una composición que comprende un polímero reticulado y unos nanotubos de carbono, así como a un procedimiento de realización de esta composición. La composición según la invención presenta unas propiedades viscosimétricas y anti-fuego sorprendentes que permiten utilizarla respectivamente en forma de un revestimiento de protección anti-fuego y en forma de una junta ignífuga.

**Estado de la técnica**

10 En aeronáutica, las pinturas clásicas se aplican generalmente mediante pulverización por medio de una pistola de pintura. Para los revestimientos a base de polímero, esta técnica es difícilmente extrapolable puesto que los polímeros utilizados presentan una consistencia pastosa. La colocación de este tipo de revestimientos puede plantear entonces un determinado número de problemas prácticos.

15 Las juntas así como las pinturas deben presentar unas propiedades de viscosidad particulares. Deben, por una parte, ser suficientemente blandas para que la colocación sea fácil, y por otra parte, fijarse lo suficiente a continuación para conservar su forma siguiendo al mismo tiempo las deformaciones eventuales de los materiales que unen.

Otro problema es el de la resistencia al fuego de los materiales en el tiempo, y en particular en el campo de la aeronáutica. Se intenta generalmente aumentar la resistencia al fuego de determinadas partes metálicas de un avión aplicando un revestimiento con el fin de retardar al máximo el calentamiento de la parte metálica que protege.

20 Las juntas que unen los materiales anti-fuego entre sí constituyen, por otro lado, otro ángulo de ataque para el fuego. En efecto, estas juntas, que no son ignífugas o lo son en pequeña medida con respecto a los materiales que unen, pueden comenzar a fundirse bastante antes de que se alcance el umbral de temperatura crítica de los materiales. En ese caso, el beneficio del material ignífugo es menor.

25 Los revestimientos anti-fuego clásicos son generalmente unos polímeros muy cargados con material inerte o con carga susceptible de reaccionar con el calor y formar una capa de pasivación que protege las partes metálicas frente a un calentamiento demasiado rápido. El inconveniente de la utilización de este tipo de revestimiento es el hecho de que la cantidad de carga necesaria es generalmente superior al 10%, lo cual tiene por efecto la alteración de las propiedades mecánicas de los polímeros utilizados y hacerlos menos blandos. Ahora bien, un revestimiento anti-fuego debe seguir los movimientos y la dilatación térmica de los elementos sobre los que se aplica. En su defecto, pueden aparecer fisuras y constituir unos puntos de ataque para el fuego.

30 Con el fin de conservar las propiedades físicas y mecánicas de un polímero anti-fuego, conservando al mismo tiempo sus propiedades de resistencia a la llama, se ha propuesto incorporar en el polímero unos nanotubos de carbono.

35 El documento WO 03/070821 describe una composición que contiene unos nanotubos de carbono con un nivel de 10 a 60% en volumen.

También se ha propuesto incorporar, además de los nanotubos de carbono, diferentes retardadores de la llama, tal como se describe en el documento EP 1 471 114, o filosilicatos, también denominados cargas arcillosas plaquetarias, tal como se describe en el documento WO 03/078315.

40 No obstante, con el fin de obtener unas buenas propiedades de resistencia al fuego, el porcentaje de las cargas adicionales del polímero sigue siendo elevado. Además, dichos polímeros anti-fuego no tienen la consistencia adaptada a su aplicación en forma de un recubrimiento o de una junta.

**Objetivos de la invención**

La presente invención prevé proporcionar una composición y un procedimiento de obtención de un recubrimiento o de una junta que no adolezcan de los inconvenientes de las composiciones del estado de la técnica.

45 En particular, la presente invención prevé proporcionar una composición que comprende una pequeña cantidad de carga adicional, que sea blanda y fácil de aplicar.

La presente invención prevé proporcionar asimismo un recubrimiento que confiere a los elementos sobre los que se aplica una excelente resistencia al calor y una junta que también resiste muy bien el calor de modo que se mantenga fijo el conjunto de los elementos que une.

50 La presente invención propone asimismo un procedimiento de obtención de dicho recubrimiento o junta anti-fuego.

### Sumario de la invención

5 La presente invención da a conocer una composición resistente al fuego que comprende polisiloxano reticulado y nanotubos de carbono en bruto que presentan un valor de bound rubber superior o igual a 15 gramos por gramo de nanotubo de carbono, representando dichos nanotubos de carbono entre 0,05 y 1% del peso total de dicha composición.

Según formas particulares de realización, la invención comprende una o varias de las siguientes características:

- el porcentaje en peso de dichos nanotubos de carbono en bruto representa entre 0,25 y 0,5% del peso total de dicha composición;
- la consistencia del polisiloxano está adaptada a una aplicación con pincel o con pistola de extrusión;
- 10 - los nanotubos de carbono en bruto se seleccionan de entre el grupo de los nanotubos de carbono de pared sencilla (SWNT), de pared doble (DWNT) o de pared múltiple (MWNT).

La invención da a conocer, por otro lado, un procedimiento de obtención de una composición según la reivindicación 1 que comprende las siguientes etapas:

- a) realizar una primera mezcla poniendo en presencia de un precursor A que comprende:
  - 15 - un polisiloxano que comprende unos grupos vinilo,
  - unos nanotubos de carbono, cuya proporción en peso está comprendida entre 0,05 y 1% del peso del producto final;
- b) añadir un precursor B, que comprende un polisiloxano con grupos hidrosilano, a la primera mezcla obtenida en la etapa a);
- 20 c) realizar la reticulación de la mezcla obtenida en la etapa b).

Según formas particulares de realización, el procedimiento comprende las siguientes características:

- la reticulación de la mezcla se realiza mediante una acción térmica, química o fotoquímica;
- la proporción en peso de los nanotubos de carbono en el procedimiento está comprendida entre 0,25 y 0,5% del peso del producto final;
- 25 - el procedimiento comprende una etapa de desgasificación de la primera mezcla antes de añadirla en la etapa b);
- dicha etapa de desgasificación se realiza mediante el efecto del vacío.

La invención da a conocer, por otro lado:

- la utilización de la composición según la invención como revestimiento de protección anti-fuego;
- la utilización de la composición según la invención como junta ignífuga;
- 30 - la utilización de la composición según la invención como recubrimiento.

### Breve descripción de las figuras

La figura 1 representa el aumento de la viscosidad del precursor del polímero en función de la cantidad de carga para materiales compuestos que comprenden o bien nanotubos de carbono o bien cargas arcillosas.

35 La figura 2 representa la variación de viscosidad del precursor del polímero en función de la cantidad de carga para materiales compuestos que comprenden unos nanotubos de carbono de diferentes naturalezas.

La figura 3 representa la variación de viscosidad del precursor del polímero en función del porcentaje en peso de nanotubos de carbono para materiales compuestos que comprenden unos nanotubos de carbono de diferentes purezas.

La figura 4 representa esquemáticamente las interacciones entre nanotubo de carbono y matriz polimérica.

40 La figura 5 representa los valores de la prueba del bound rubber de una composición a base de polisiloxano compuesta por una matriz de PDMS que comprende unos grupos vinilo, en función de los nanotubos de carbono procedentes de diferentes productores. Los nanotubos de carbono NC 7000, NC 9000, NC 3100 y NC 3101 producidos por el inventor de la presente invención, son respectivamente unos nanotubos de carbono de pared múltiple en bruto (NC 7000), cubiertos de polietileno (NC 9000), purificados (NC 3100) y purificados y después  
45 funcionalizados con COOH (NC 3101).



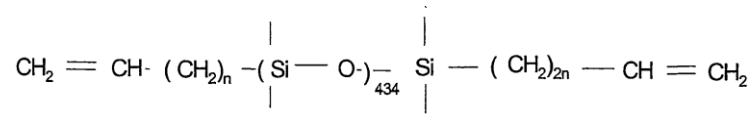
**Esquema 1**

La composición de la resina Slygard 184 de Dow Corning se facilita en la tabla 1 y la estructura química de los componentes se facilita en los esquemas 2 a 5.

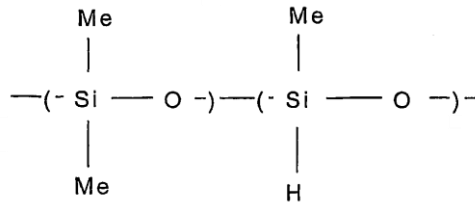
	Precursor A	Precursor B
Constituyente 1	PDMS terminado en vinilo SFD 117	Polímero de Si-H (0,76% de H, MDD(H))
Naturaleza y porcentaje	67%	60%
Constituyente 2	VQM 1 (2% de vinilo)	SFD 117
Naturaleza y porcentaje	31%	39%
Constituyente 3	Catalizador de platino	Inhibidor de metilciclotetrasiloxano
Naturaleza y porcentaje	0,14%	1%
Otros constituyentes	Compuestos cíclicos y silicona de bajo peso molecular volátil (1,5%) y xileno (0,7%)	
Viscosidad dinámica	4817 cP	89,1 cP

5

Tabla 1: composición de la resina

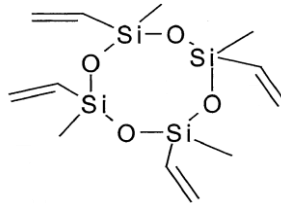


Esquema 2: SFD 117, polisiloxano portador de grupos vinilo

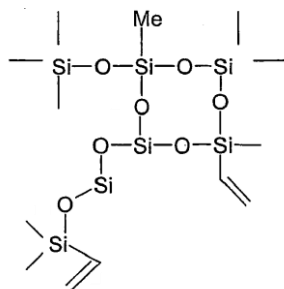


10

Esquema 3: polímero de tipo polisiloxano portador de grupos hidrosilano



Esquema 4: inhibidor de reticulación



Esquema 5: matriz de VQM que comprende una microrred de polidimetilsiloxano

5 El efecto de los nanotubos de carbono sobre la viscosidad de los constituyentes del polímero en el que se incorporan, concretamente el precursor A, está ilustrado en la figura 1. La viscosidad del precursor A que contiene unos nanotubos de carbono de pared múltiple aumenta netamente con respecto a composiciones más clásicas que contienen cargas arcillosas.

Tal como se muestra en las figuras 2 y 3, la viscosidad del precursor A varía en función de diferentes parámetros tales como el tamaño, el diámetro y la pureza de los nanotubos de carbono.

10 Parece que una proporción de carga de menos de 1% en peso de nanotubos de carbono permite un aumento significativo de la viscosidad y más particularmente con los nanotubos de carbono en bruto. Estos últimos provocan un aumento significativo de la viscosidad del polímero con proporciones de carga muy pequeñas comprendidas entre 0,2 y 0,3% en peso, tal como se muestra en la figura 3. Este aumento sorprendente de la viscosidad se explica por la afinidad tan grande de los nanotubos de carbono en bruto por el polímero de polisiloxano (figura 4), tal como muestran las mediciones efectuadas gracias a una prueba denominada de "bound rubber" (tabla 2). El procedimiento experimental de esta prueba consiste en extraer 3,5 g de la mezcla de precursor A/nanotubos de carbono con 30 ml de disolvente (heptano) durante 4 h, a 25°C. Tras centrifugación y evaporación del disolvente, se pesa el residuo seco con el fin de determinar la cantidad de polímero de PDMS unido a los nanotubos de carbono.

Composición del sistema	Contenido de PDMS fijado por gramo de carga (en g)	Conclusiones
0,5% de NC 7000	21 ± 3	Muy buena afinidad entre el PDMS y los nanotubos de carbono en bruto
Montmorillonita	~ 0,1	Ninguna afinidad
Sepiolita	2,5	Afinidad limitada

20

Tabla 2: afinidad de los nanotubos de carbono por la matriz polimérica de la composición

25 Esta tabla muestra que los nanotubos en bruto presentan una afinidad muy superior con el precursor A con relación a las arcillas (sepiolita y montmorillonita). La figura 5 compara los resultados en la prueba de bound rubber de nanotubos de carbono procedentes de diferentes productores. Parece claramente que el nanotubo de carbono en bruto de Nanocyl obtiene un valor significativamente más elevado con relación a los demás nanotubos.

Las propiedades viscosimétricas del precursor A cargado débilmente con nanotubos de carbono permiten la aplicación con pincel de este precursor con vistas a recubrir la superficie de un material. De modo sorprendente, incluso con esta pequeña proporción de carga de nanotubos de carbono, la composición obtenida tras reticulación presenta un efecto anti-fuego significativo.

30 Se ha estudiado la capacidad de resistencia al fuego de la composición según la invención gracias a una prueba que se inspira en la prueba ISO 2685 utilizada en la aeronáutica.

La prueba se realiza con la ayuda de un mechero Bunsen de 5 cm de diámetro (figura 6). La placa de aluminio recubierta o no con la composición, de una superficie de 145\*145 mm y de 4 mm de grosor, se coloca 2 cm por encima del quemador. Se sujeta mediante dos barras metálicas horizontales colocadas en cada extremo de la placa.

35 Un termopar mide de modo continuo la temperatura en el centro de la placa, en el lado de aluminio no recubierto.

La prueba al fuego se cronometra y la temperatura se anota cada dos a tres minutos.

- 5 Con el fin de seguir las condiciones y la evolución de la prueba al fuego, se determina la potencia de calefacción del quemador mediante el siguiente procedimiento: en primer lugar, se mide la temperatura de la llama, luego se calienta una cantidad conocida de agua (por ejemplo, 700 cl, es decir 700 g) sobre la llama en un cristizador, colocado a una altura equivalente a la que se deposita la placa, y se anota su temperatura a intervalos regulares (por ejemplo, cada quince segundos). Entonces se puede trazar una gráfica de la temperatura del agua en función del tiempo. Según la siguiente relación, la potencia de calefacción ( $P_{\text{calefacción}}$ ) se expresa en kW:

$$P_{\text{calefacción}} = m_{\text{agua}} * C_{\text{Pagua}} * \frac{dT}{dt}$$

- 10 en la que — corresponde a la pendiente de la curva de temperatura en función del tiempo,  $C_{\text{Pagua}} = 4,185 \text{ kJ/kg.K}$  y  $m_{\text{agua}}$  corresponde a la masa de agua expresada en kg. Teniendo en cuenta la sección del cristizador ( $S = \pi R^2$ , expresado en  $\text{m}^2$ ), la potencia de calefacción vale de forma típica aproximadamente  $70 \pm 5 \text{ kW/m}^2$ , mientras que la temperatura de la llama es de aproximadamente  $1000^\circ\text{C}$ .

- 15 Así, durante cada serie de pruebas al fuego, se realiza una medición de la potencia de calefacción y se somete a prueba una placa de aluminio virgen. Estas dos operaciones permiten conocer la potencia del quemador y verificar que su potencia no varía de un ensayo a otro. Antes de quemar la placa destinada a ser sometida a la prueba, se efectúa una medición de la temperatura de la llama. Durante el ensayo, se mide la temperatura del termopar sostenido y en contacto por encima de la placa cada dos a tres minutos. Entonces se apuntan las siguientes observaciones: presencia o ausencia de humos, desprendimiento de un trozo o de una capa del revestimiento, aspecto del revestimiento, inicio del curvado de la placa.

- 20 La prueba alcanza su fin cuando el termopar traspasa la placa o cuando la placa se curva hasta tocar el quemador. Si esto no se ha producido después de 90 minutos de prueba, se detiene el ensayo.

Se traza una gráfica de la evolución de la temperatura de la placa en función del tiempo, que permite comparar así varias formulaciones entre sí y separar aquéllas con mejores prestaciones.

- 25 Los elementos, sobre los que se aplica la composición anti-fuego según la invención y que son preferentemente unas placas de aluminio, se elaboran preferentemente gracias a un molde (figura 8). El molde se ensambla gracias a 24 tornillos (no se han representado todos) colocados en el contorno y las varillas de separación.

Las placas de aluminio se realizan preferentemente en un local termostataado a  $20^\circ\text{C}$  y cuyo grado de humedad está comprendido entre 50 y 65%.

- 30 Las diferentes etapas para la realización de una placa de aluminio destinada a una prueba al fuego son las siguientes:

- 1) elaborar la mezcla de precursor A y nanotubos de carbono, durante 2 h a temperatura ambiente, con la ayuda de una barrita de agitación que gira a 1200 revoluciones/minuto;
  - 2) limpiar las placas de aluminio con dicloroetano, luego con metil-etil-cetona o con 2-butanona y, después de evaporar el disolvente, aplicar una imprimación (1200 OS de la empresa Dow Corning) que garantice la adhesión entre el revestimiento y el aluminio;
  - 3) desgasificar la mezcla de precursor A y nanotubos de carbono durante 10 min. a 8,9 mbar de presión;
  - 4) añadir el precursor B a la mezcla de precursor A/nanotubos de carbono.
- 35

### Ejemplo

A 10 partes del precursor A que comprende:

- 40
- 67% en peso de una matriz de PDMS que comprende unas terminaciones de vinilo,
  - 31% en peso de una matriz de VQM que comprende unos grupos vinilo,
  - 1% en peso de nanotubos de pared sencilla y/o pared múltiple,
  - 0,14% en peso de catalizador a base de platino,
  - unos compuestos cíclicos y silicona de bajo peso molecular volátil y xileno,

- 45 se les añade, tras desgasificación a 8,9 mbar de presión durante 10 min., 1 parte del precursor B que comprende:

- 60% en peso de un polímero de Si-H,
- 39% en peso de una matriz de PDMS que comprende unas terminaciones de vinilo,
- 1% en peso de un inhibidor de reticulación de metilciclotetrasiloxano.

5 A continuación se efectúa la reticulación colocando el elemento recubierto con la mezcla de precursor A/precursor B, preferentemente de placas de aluminio, a 105°C durante por lo menos seis horas.

La colocación de la composición sobre placas de aluminio, por ejemplo en forma de un revestimiento, se puede realizar según diferentes modos de realización preferidos.

Un primer modo de colocación del revestimiento consiste en una inyección de la composición según la invención sobre las placas de aluminio de una dimensión de 145\*145 mm; esto representa 120 g de composición por placa.

10 Un segundo modo de colocación del revestimiento consiste en una colada de la composición según la invención por encima de las placas de aluminio recubiertas con imprimación. A continuación se enrasa la superficie con una espátula con el fin de obtener un buen grosor de revestimiento. En este modo de realización, la placa superior del molde (figura 8) no está montada.

15 Un tercer modo de colocación del revestimiento consiste en una aplicación de la composición según la invención gracias a un pincel.

Los grosores de revestimiento así obtenidos son de 3 ó 4 mm de grosor para el primer y el segundo modos de colocación del revestimiento y de 2 mm para el tercer modo de realización.

20 Tal como se muestra en las figuras 9 a 11, la resistencia al fuego de una placa de aluminio recubierta con una composición que contiene nanotubos de carbono mejora netamente con relación a una placa de aluminio desnuda o con respecto a una placa de aluminio recubierta con el polímero solo.

25 Entre las composiciones que contienen 1% en peso de nanotubos de carbono (figura 9), se puede realizar una distinción entre los diferentes nanotubos de carbono utilizados. Las que confieren una mejor resistencia al fuego son, por orden de importancia, los DWNT (nanotubos de pared doble), los MWNT y finalmente los "thin MWNT". Además, parece claramente, a la vista de los resultados de la figura 9, que son los nanotubos de carbono indicados como "en bruto", ya sean MWNT o MWNT finos, los que confieren una mejor resistencia al fuego en el transcurso del tiempo. Estos nanotubos de carbono "en bruto" son unos nanotubos que no se han sometido a ningún tratamiento tras la síntesis y que presentan una gran afinidad con la matriz de polisiloxano.

30 Se obtiene una mejora significativa de las propiedades anti-fuego para composiciones que contienen de 0,5% a 0,25%, en peso de nanotubos de carbono. Esta mejora sigue siendo incluso significativa al 0,05% en peso de nanotubos de carbono. De nuevo, se obtienen los mejores resultados con nanotubos de carbono "en bruto", que no se han sometido a ningún tratamiento tras la síntesis y que presentan una gran afinidad con la matriz de polisiloxano.

Se efectúan unas mediciones de temperatura en el centro de la placa de prueba, así como en uno de los extremos

de esta misma placa. Se determina un valor de R tal como sigue:

$$R = \frac{T_c}{T_e},$$

35 siendo Tc la temperatura medida en el centro de la placa de ensayo y Te, la temperatura medida en el extremo de la placa de ensayo.

Si R=1, esto significa que hay sobre la placa una disipación de calor rápida e importante, mientras que si R>1, esto significa que la disipación de calor es pequeña.

40 Tal como se muestra en la figura 1, el empleo en un polímero de silicona de nanotubos de carbono permite una mejor disipación de calor. Además, es ventajoso utilizar 0,25% en peso de nanotubo de carbono, incluso 0,1%, un valor para el cual la disipación de calor se aproxima al valor óptimo (R=1).

45 Para determinar un umbral mínimo de nanotubos de carbono para el que se constatará una mejora de la resistencia al fuego del PDMS, se ha sometido a prueba una concentración de 0,05% en peso de los nanotubos de carbono de pared múltiple. La figura 13 muestra que el efecto de protección de la placa de aluminio siempre está muy presente para una duración de 60 minutos.

Por otro lado, la aplicación de una tensión, o presión, sobre una composición polimérica modifica la viscosidad de la misma. Entonces es posible elegir la proporción de carga de nanotubos de carbono que corresponde a la viscosidad deseada para el empleo de la composición según la invención en una pistola de extrusión, del tipo pistola para juntas o masilla. En un dispositivo de este tipo, la presión ejercida sobre el pistón modifica la viscosidad de la



composición y la vuelve más fluida, lo cual permite una aplicación fácil de la composición. Desde el momento en que cesa la presión, la viscosidad del producto cambia de nuevo y la composición se endurece y ya no fluye.

**REIVINDICACIONES**

1. Composición resistente al fuego que comprende polisiloxano reticulado y unos nanotubos de carbono en bruto que tienen un valor de "bound rubber" superior o igual a 15 gramos por gramo de nanotubo de carbono, representando dichos nanotubos de carbono entre 0,05 y 1% del peso total de dicha composición.
- 5 2. Composición según la reivindicación 1, en la que el porcentaje en peso de dichos nanotubos de carbono en bruto representa entre 0,25 y 0,5% del peso total de dicha composición.
3. Composición según la reivindicación 1 ó 2, en la que la consistencia del polisiloxano está adaptada a una aplicación con pincel o con pistola de extrusión.
- 10 4. Composición según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, en la que los nanotubos de carbono en bruto se seleccionan de entre el grupo de los nanotubos de carbono de pared sencilla (SWNT), de pared doble (DWNT) o de pared múltiple (MWNT).
5. Procedimiento de obtención de una composición según la reivindicación 1, que comprende las siguientes etapas:
  - a) realizar una primera mezcla poniendo en presencia de un precursor A que comprende:
    - un polisiloxano que comprende unos grupos vinilo,
    - 15 - unos nanotubos de carbono, cuya proporción en peso está comprendida entre 0,05 y 1% del peso del producto final;
  - b) añadir un precursor B, que comprende un polisiloxano con unos grupos hidrosilano, a la primera mezcla obtenida en la etapa a);
  - c) realizar la reticulación de la mezcla obtenida en la etapa b).
- 20 6. Procedimiento según la reivindicación 5, en el que la reticulación de la mezcla se realiza mediante una acción térmica, química o fotoquímica.
7. Procedimiento según la reivindicación 5, en el que la proporción en peso de los nanotubos de carbono está comprendida entre 0,25 y 0,5% del peso del producto final.
- 25 8. Procedimiento según la reivindicación 5, en el que dicho procedimiento comprende una etapa de desgasificación de la primera mezcla antes de añadirla en la etapa b).
9. Procedimiento según la reivindicación 8, en el que dicha etapa de desgasificación se realiza mediante el efecto del vacío.
10. Utilización de la composición según cualquiera de las reivindicaciones anteriores como revestimiento de protección anti-fuego.
- 30 11. Utilización de la composición según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, como junta ignífuga.
12. Utilización de la composición según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, como recubrimiento.

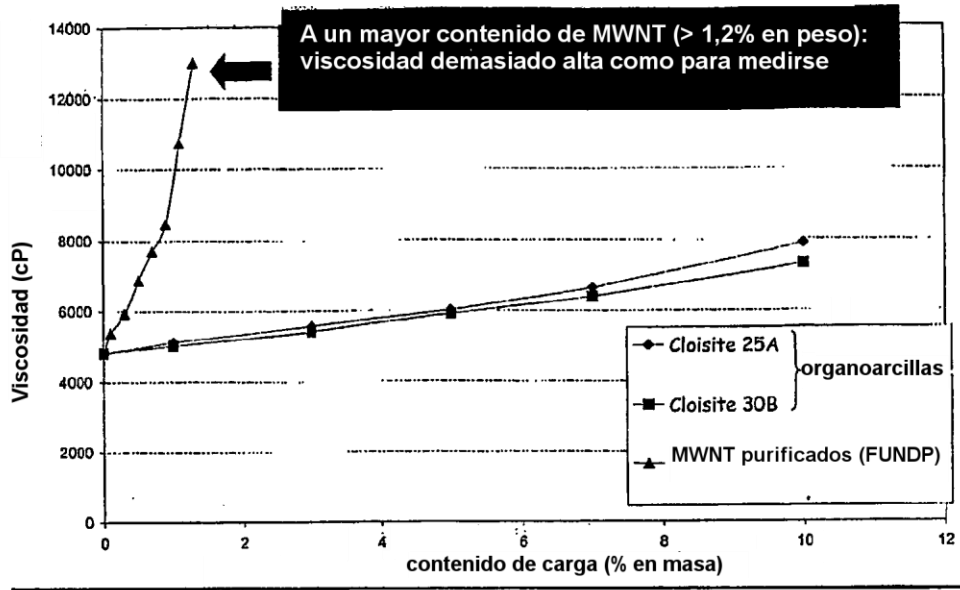


Fig. 1

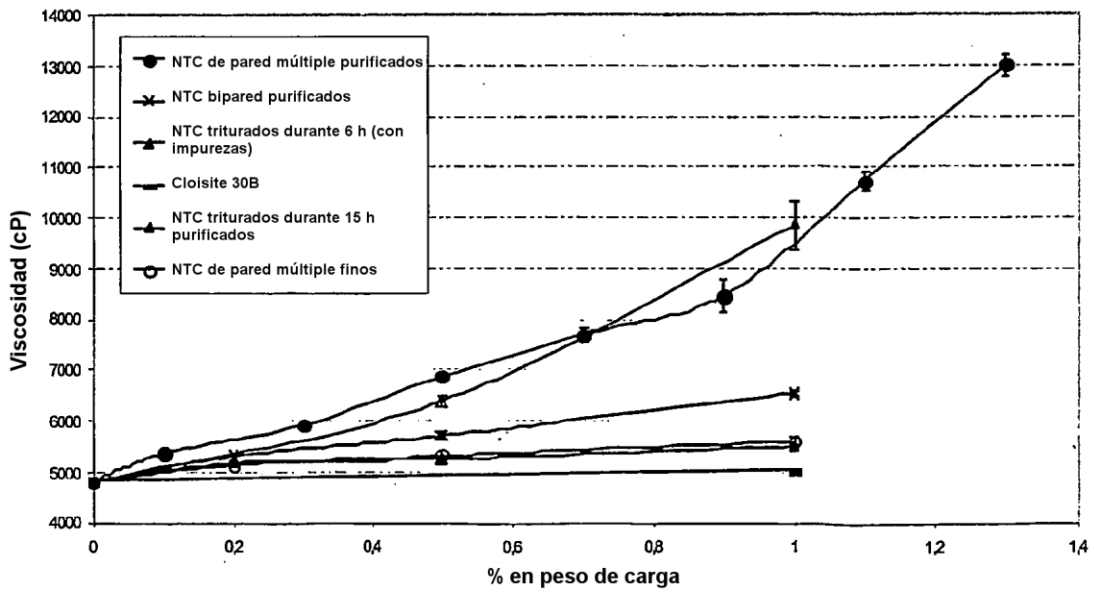


Fig. 2

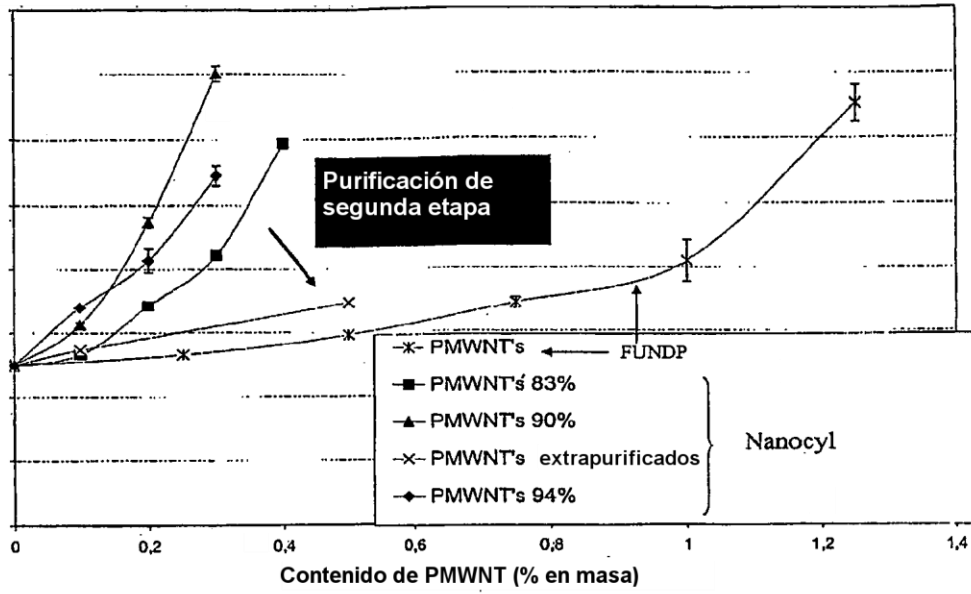


Fig. 3

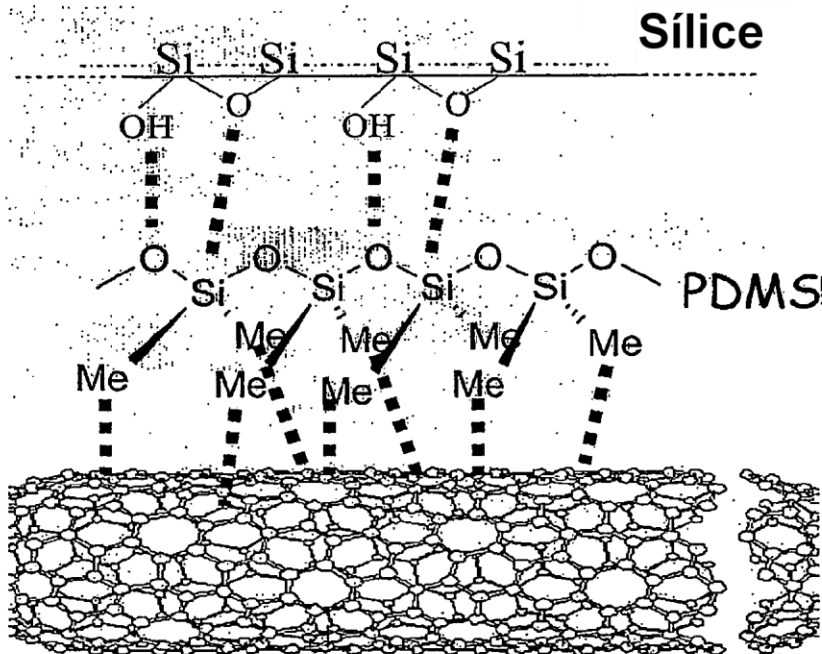


Fig. 4

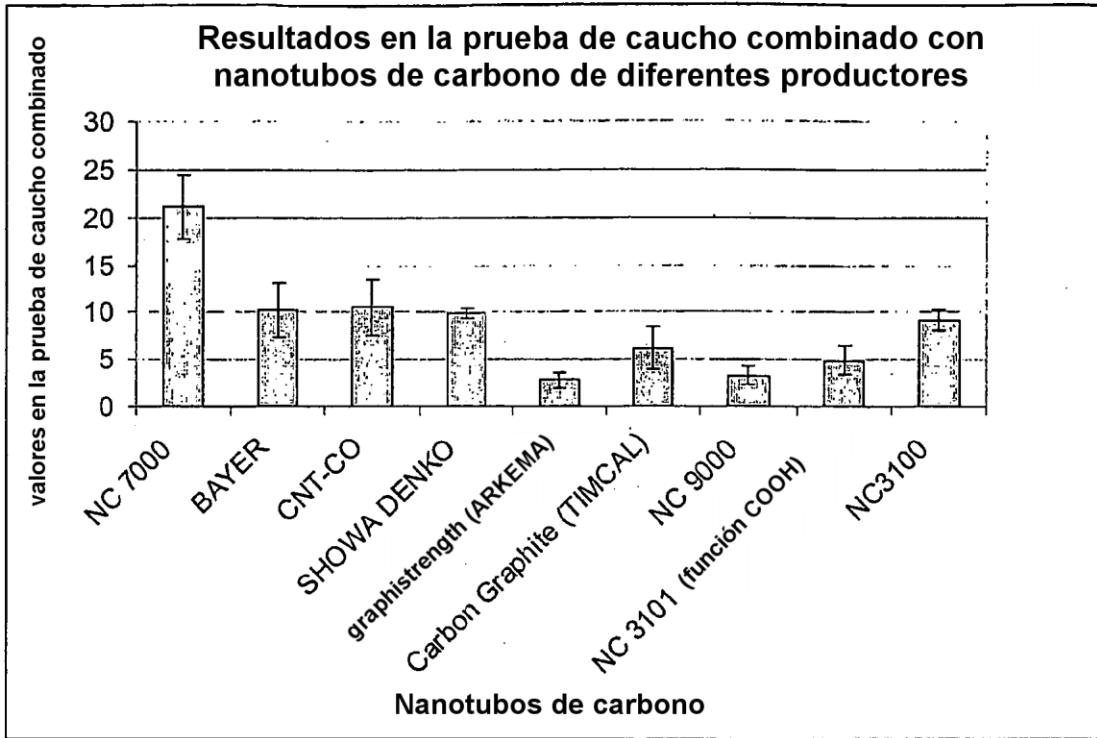


Fig. 5

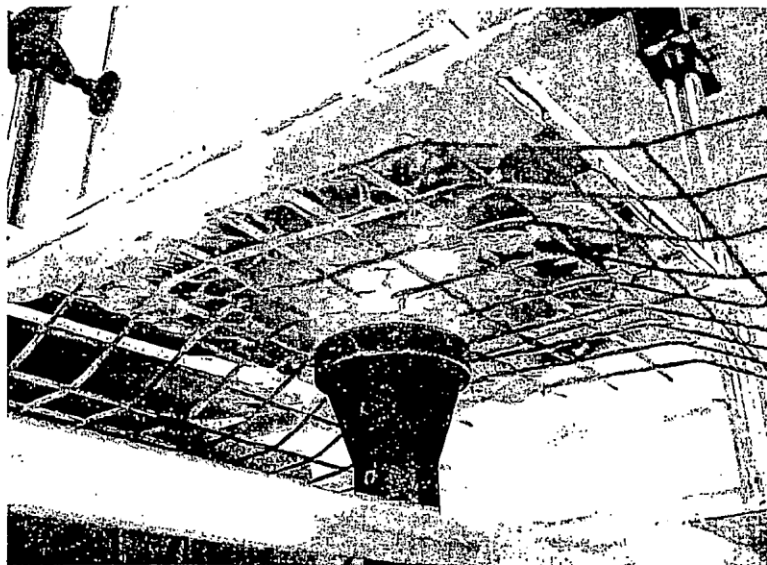


Fig. 6

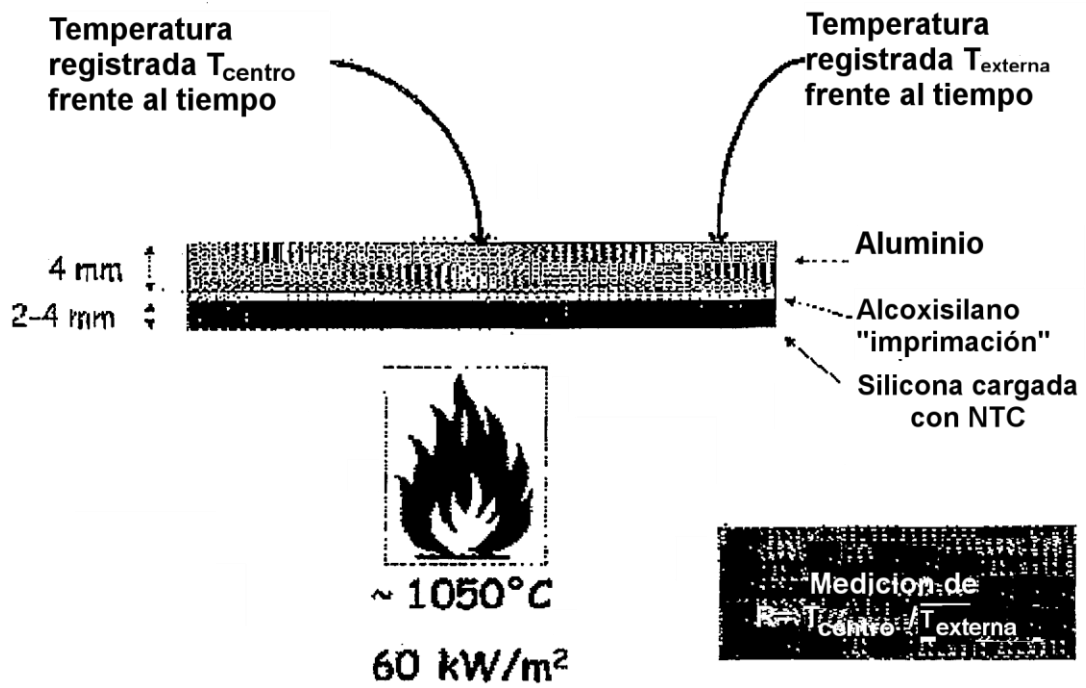


Fig.7

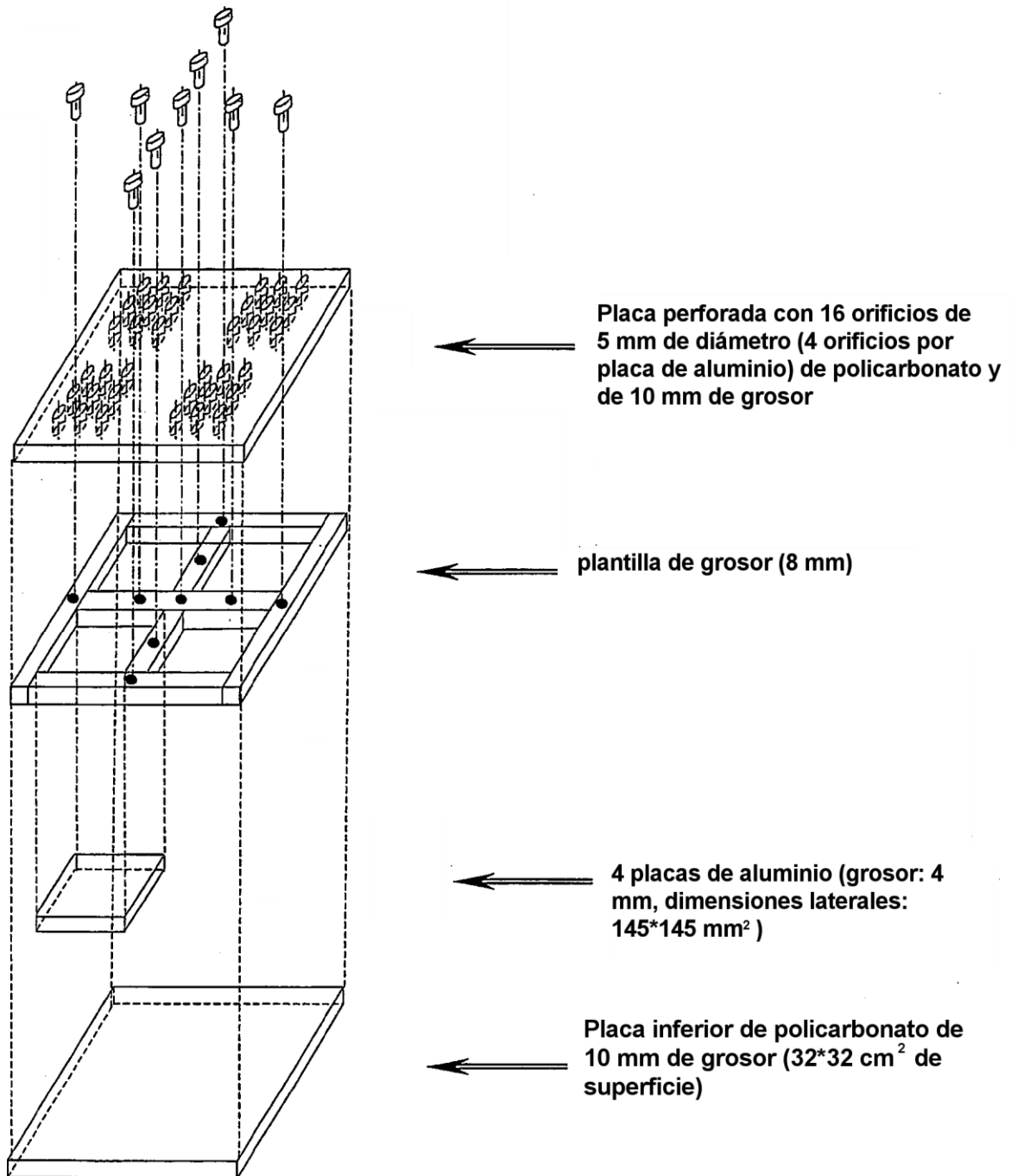


Fig.8

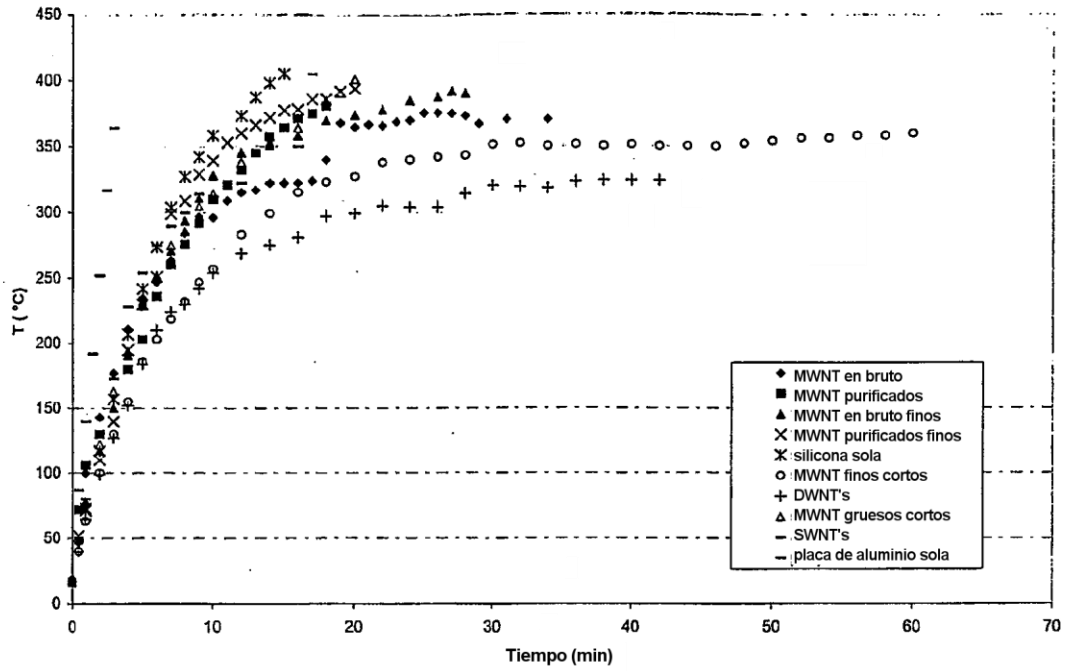


Fig. 9

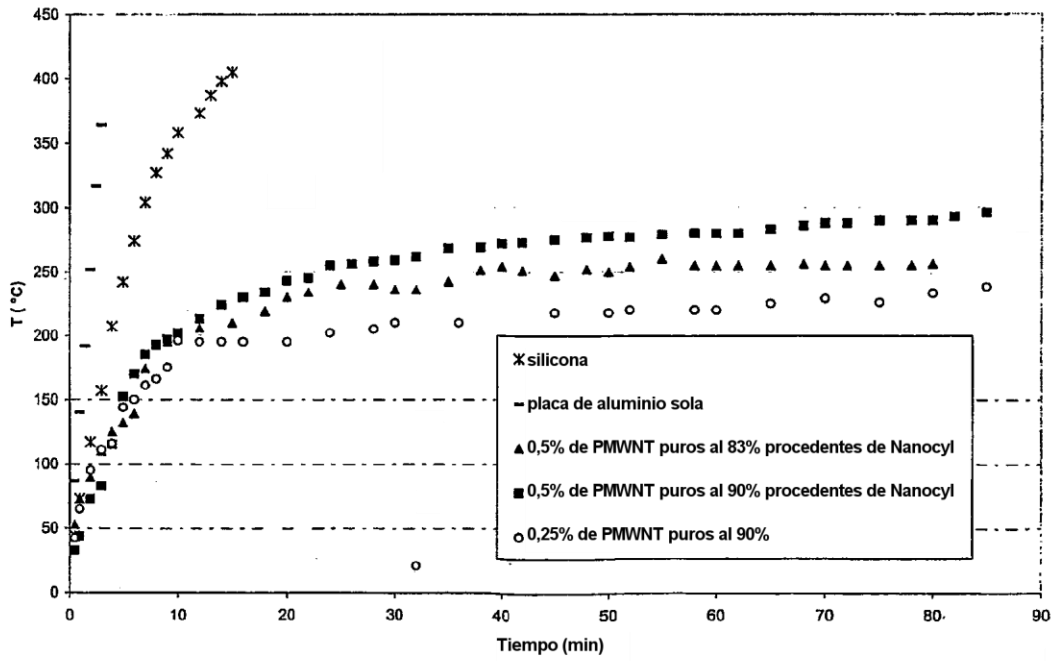


Fig. 10



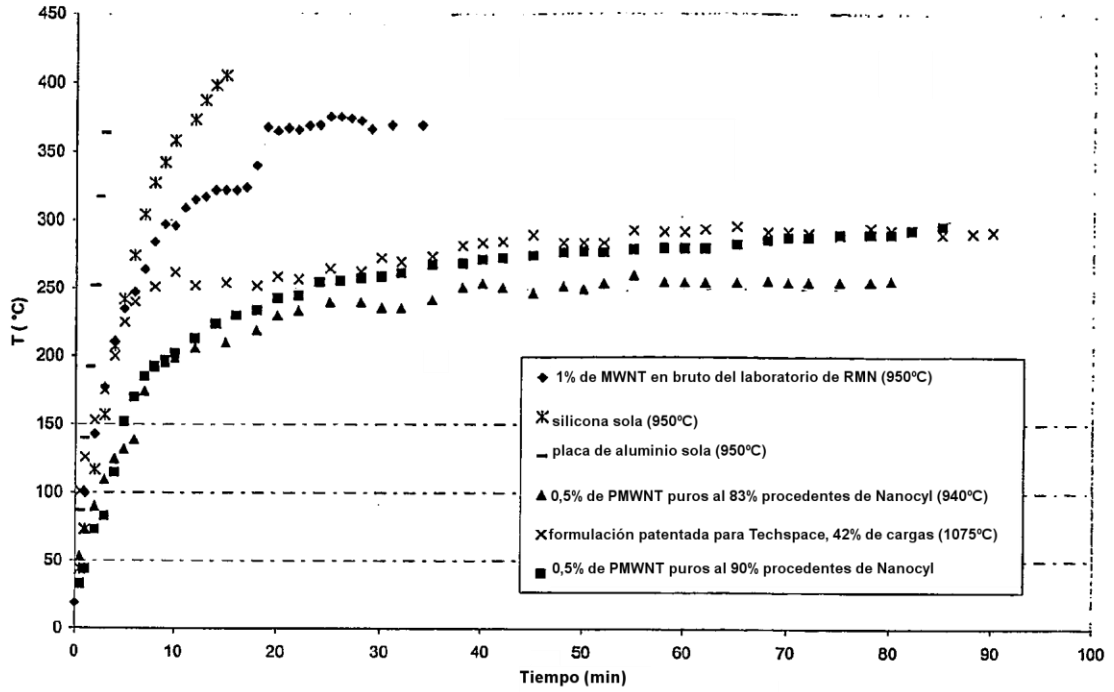


Fig. 11

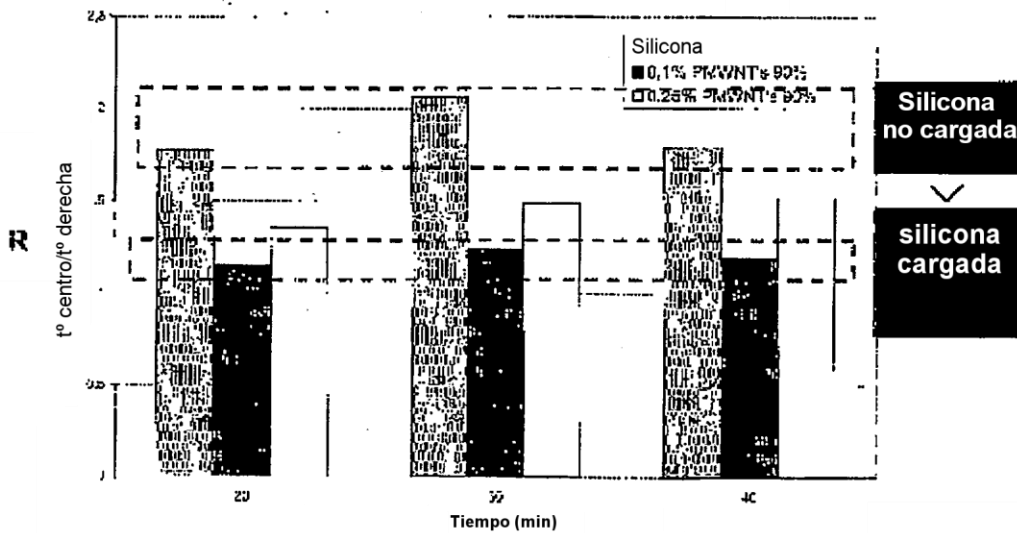


Fig. 12

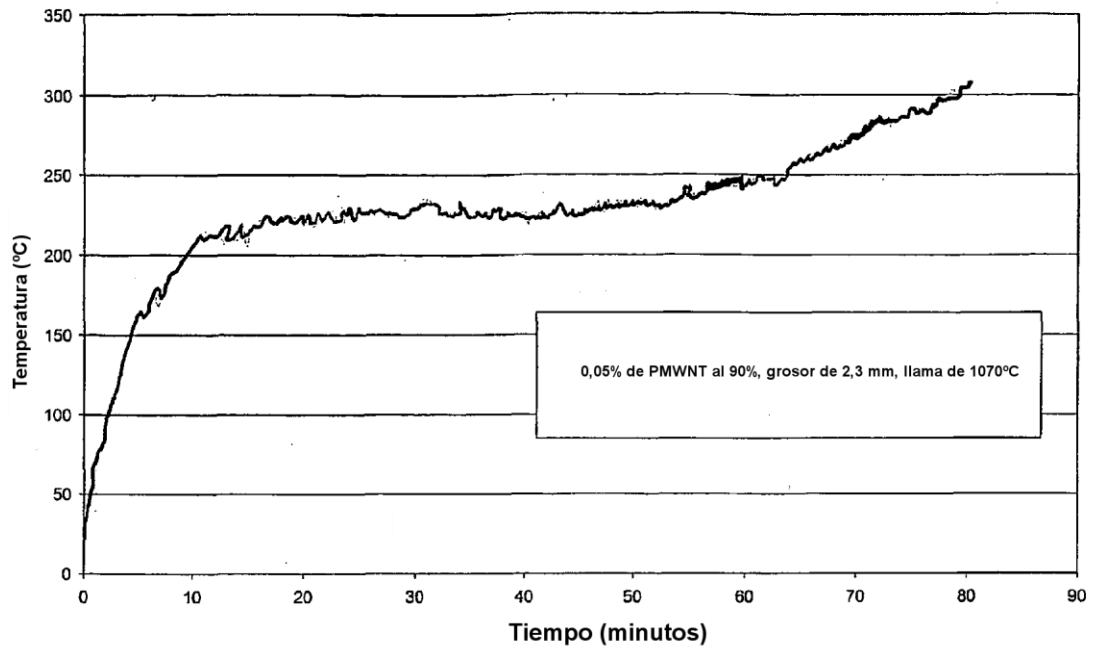


Fig. 13