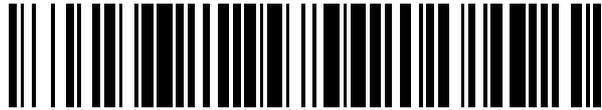


19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 395 822**

51 Int. Cl.:

**B01J 10/00** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **30.06.2004 E 04743159 (8)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **29.08.2012 EP 1665437**

54 Título: **Un módulo reformador**

30 Prioridad:

**26.07.2003 GB 0317575**

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:  
**15.02.2013**

73 Titular/es:

**ROLLS-ROYCE FUEL CELL SYSTEMS LIMITED  
(100.0%)  
MOOR LANE  
DERBY DE24 8BJ, GB**

72 Inventor/es:

**AGNEW, GERARD DANIEL;  
CUNNINGHAM, ROBERT HAY;  
BUTLER, PHILIP DAVID y  
COLLINS, ROBERT DARRALL**

74 Agente/Representante:

**LAZCANO GAINZA, Jesús**

**ES 2 395 822 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

Un módulo reformador

5 La presente invención se relaciona con un módulo reformador para un sistema de celdas de combustible y en particular con un reformador para un sistema de celdas de combustible de óxido sólido.

10 El reformado con vapor de metano es una reacción altamente endotérmica y resulta en una refrigeración localizada en la unidad reformadora.

15 A las temperaturas usadas para el reformado con vapor en una celda de combustible de óxido sólido, las cinéticas de la reacción de reformado con vapor son extremadamente rápidas. Un problema con el reformado con vapor interno indirecto en una celda de combustible de óxido sólido es el desajuste entre la actividad del catalizador de reformado con vapor y el calor disponible proveniente de las celdas de combustible de óxido sólido. Como resultado se puede producir un gradiente de temperatura elevado a lo largo de la longitud de la unidad reformadora.

20 Este problema se puede reducir usando sólo una pequeña fracción de la actividad disponible en el catalizador. Prácticamente esto se puede lograr proporcionando una distribución no uniforme del catalizador o proporcionando una barrera contra la difusión sobre la superficie del catalizador. Tradicionalmente una capa de catalizador se proporciona sobre la superficie exterior de una pastilla y una capa de barrera se proporciona sobre la capa de catalizador o una capa de lechada de catalizador se proporciona sobre la superficie interior de un soporte hueco y una capa de barrera se proporciona sobre la capa de catalizador. En ambos casos, la aplicación de una capa de catalizador o de barrera es extremadamente difícil debido a la naturaleza irregular de la superficie de la pastilla y el soporte hueco y en el caso del soporte hueco es extremadamente difícil recubrir la superficie interior del soporte hueco. Además, la distribución no uniforme de la capa de catalizador también es extremadamente difícil en estos dos casos.

25 En consecuencia, la presente invención pretende proporcionar un módulo reformador novedoso, el cual reduce, preferiblemente supera, los problemas mencionados anteriormente.

30 En consecuencia, la presente invención proporciona un módulo reformador que comprende un miembro de soporte hueco que tiene al menos un pasaje que se extiende longitudinalmente a través de este, medios para suministrar un combustible hacia al menos un pasaje, el miembro de soporte hueco que tiene una superficie externa, una capa de catalizador de reformado dispuesta sobre al menos una porción de la superficie externa del miembro de soporte hueco y una capa de sellado hermético al gas dispuesta sobre la capa de catalizador y la superficie externa del miembro de soporte hueco distinta de al menos una porción de la superficie externa del miembro de soporte hueco.

35 Preferiblemente, una capa de barrera se dispone sobre al menos una porción de la superficie externa del miembro de soporte hueco y la capa de catalizador se dispone sobre la capa de barrera.

40 Preferiblemente, la capa de barrera se dispone sustancialmente sobre la totalidad de la superficie externa del miembro de soporte hueco.

45 Preferiblemente, una capa de catalizador se dispone sobre la capa de barrera en cada una de una pluralidad de regiones de la superficie externa del miembro de soporte hueco, la capa de sellado se dispone sobre la capa de catalizador en cada una de las regiones de la superficie externa del miembro de soporte hueco que tiene una capa de catalizador y sobre la capa de barrera y el miembro de soporte hueco en las regiones de la superficie externa del miembro de soporte hueco distintas de la pluralidad de regiones.

50 Las capas de catalizador en la pluralidad de regiones se pueden separar longitudinalmente del miembro de soporte hueco. Las capas de catalizador en las regiones pueden tener diferentes áreas. Las capas de catalizador en la pluralidad de regiones pueden aumentar en área longitudinalmente desde un primer extremo hasta un segundo extremo del miembro de soporte hueco.

55 Alternativamente, la capa de catalizador se puede disponer sustancialmente sobre la totalidad de la capa de barrera, la capa de barrera tiene un espesor diferente en las diferentes regiones. La capa de barrera puede disminuir en espesor desde un primer extremo hasta un segundo extremo del miembro de soporte hueco.

60 Alternativamente, la capa de barrera puede tener aberturas pasantes y el área total de la sección transversal de las aberturas en la capa de barrera es diferente en las diferentes regiones. El área total de la sección transversal de las aberturas en la capa de barrera en las diferentes regiones puede aumentar desde un primer extremo hasta un segundo extremo del miembro de soporte hueco. Las dimensiones de las aberturas pueden aumentar y/o el número de aberturas puede aumentar.

Alternativamente, la capa de catalizador tiene una actividad diferente en las diferentes regiones. Las capas de catalizador en las diferentes regiones pueden aumentar en actividad desde un primer extremo hasta un segundo extremo del miembro de soporte hueco.

5 Preferiblemente, el primer extremo es una entrada para un combustible de hidrocarburos que se va a reformar y el segundo extremo es una salida para un combustible reformado.

Preferiblemente, el miembro de soporte hueco comprende una pluralidad de pasajes que se extienden longitudinalmente.

10 Preferiblemente, el miembro de soporte hueco es poroso.

Alternativamente, el miembro de soporte hueco es no poroso y tiene una pluralidad de aberturas que se extienden a través de este.

15 El área total de la sección transversal de las aberturas en el miembro de soporte hueco no poroso puede ser diferente en las diferentes regiones.

20 El área total de la sección transversal de las aberturas en el miembro de soporte hueco no poroso en las diferentes regiones puede aumentar desde un primer extremo hasta un segundo extremo del miembro de soporte hueco. Las dimensiones de las aberturas pueden aumentar y/o el número de aberturas puede aumentar.

La presente invención se describe más completamente a modo de ejemplo con referencia a las figuras acompañantes en las que:

25 La Figura 1 es una vista en perspectiva de un módulo reformador de acuerdo con la presente invención. La Figura 2 es una vista en sección transversal ampliada transversalmente a través del módulo reformador mostrado en la Figura 1.

La Figura 3 es una vista en sección transversal ampliada longitudinalmente a través del módulo reformador mostrado en la Figura 1.

30 La Figura 4 es una vista en planta de la capa de catalizador de un módulo reformador de acuerdo con la presente invención.

La Figura 5 es una vista en sección transversal longitudinal a través del módulo reformador mostrado en la Figura 4.

La Figura 6 es una vista alternativa en sección transversal ampliada transversalmente a través del módulo reformador mostrado en la Figura 1.

35 La Figura 7 es una vista adicional alternativa en sección transversal ampliada transversalmente a través del módulo reformador mostrado en la Figura 1.

La Figura 8 es otra vista alternativa en sección transversal ampliada transversalmente a través del módulo reformador mostrado en la Figura 1.

40 Un módulo reformador 10, como se muestra en las Figuras 1, 2 y 3 comprende un miembro de soporte hueco poroso 12 que tiene una pluralidad de pasajes 14 que se extienden longitudinalmente a través de este desde un primer extremo 16 hasta un segundo extremo 18. El miembro de soporte hueco poroso 12 tiene una superficie externa 20 y una capa de barrera porosa 22 se dispone sustancialmente sobre la totalidad de la superficie externa 20 del miembro de soporte hueco poroso 12. Una capa de catalizador 24 se dispone sustancialmente sobre la totalidad de la capa de barrera porosa 22 y una capa de sellado 26 se dispone sobre la capa de catalizador 24, sobre cualquier parte de la capa de barrera porosa 22 no cubierta por la capa de catalizador 24 y la superficie externa 20 del miembro de soporte hueco poroso 12 distinta de la porción cubierta por la capa de barrera porosa 22.

50 Se debe observar que el miembro de soporte hueco poroso 12 tiene dos superficies externas paralelas sustancialmente planas 20A y 20B y que la capa de barrera porosa 22, la capa de catalizador 24 y capa de sellado 26 se aplican en ambas superficies externas 20A y 20B.

60 La capa de barrera porosa 22 es una capa de barrera contra la difusión para controlar la velocidad de difusión del combustible de hidrocarburos desde los pasajes 14 hacia la capa de catalizador 24. El miembro de soporte hueco poroso 12 comprende, por ejemplo, espinela de aluminato de magnesio, circonia estabilizada con itria, carburo de silicio u otras cerámicas adecuadas. La capa de barrera porosa 22 comprende, por ejemplo, circonia estabilizada con itria. La capa de catalizador 24 comprende, por ejemplo, rodio, níquel u otro catalizador de reformado adecuado y comprende preferiblemente aproximadamente un 1% en peso del material del catalizador dispersado en un material adecuado, por ejemplo circonia estabilizada con itria. La capa de sellado 26 es hermética al gas y comprende, por ejemplo, circonia estabilizada con itria no porosa vidriosa o densa.

La capa de barrera porosa 22 y la capa de catalizador 24 se pueden depositar mediante serigrafía, impresión a chorros de tinta, pintura con pincel, inmersión o recubrimiento con lechada.

En operación, un combustible de hidrocarburos, por ejemplo metano, se suministra en el primer extremo 16 del módulo reformador 10. El combustible de hidrocarburos fluye a través de los pasajes 14 desde el primer extremo 16 hasta el segundo extremo 18 del módulo reformador 10. El combustible de hidrocarburos se difunde a través del miembro de soporte hueco poroso 12 y a través de la capa de barrera porosa 22 hacia la capa de catalizador 24. El combustible de hidrocarburos se reforma en la capa de catalizador 24 y los productos de la reacción de reformado, hidrógeno, monóxido de carbono, dióxido de carbono, etc. se difunden a través de la capa de barrera porosa 22 y el miembro de soporte hueco poroso 12 hacia los pasajes 14. Los productos de la reacción de reformado fluyen a través del pasaje 14 y fuera del segundo extremo 18 del módulo reformador 10 y se suministran a un sistema de celdas de combustible de óxido sólido (no mostrado).

Una modalidad adicional de un módulo reformador 10B de acuerdo con la presente invención se muestra en las Figuras 4 y 5. El módulo reformador 10B es sustancialmente el mismo que el mostrado en las Figuras 1 a 3 y las partes similares se designan con números similares. En esta modalidad, la capa de catalizador 24 no cubre la totalidad de la capa de barrera porosa 22, sino más bien las capas de catalizador 24 se proporcionan en una pluralidad de regiones separadas longitudinalmente a lo largo del módulo reformador 10B. Se debe observar que las áreas de contacto entre las capas de catalizador 24 y la capa de barrera porosa 22 aumentan progresivamente desde el primer extremo 16 hasta el segundo extremo 18 del módulo reformador 10B. Esto es para controlar la velocidad de reacción de la reacción de reformado en la capa de catalizador 24 longitudinalmente a lo largo del módulo reformador 10B, asegurando que haya menos catalizador en el primer extremo 16 que en el segundo extremo 18 del módulo reformador 10B y aumentando progresivamente la cantidad de catalizador entre el primer extremo 16 y el segundo extremo 18 del módulo reformador 10B, de manera que los gradientes de temperatura longitudinalmente a lo largo del módulo reformador 10B se reducen o minimizan.

Otra modalidad de un módulo reformador 10C de acuerdo con la presente invención se muestra en la Figura 6. El módulo reformador 10C es sustancialmente el mismo que el mostrado en las Figuras 1 a 3 y las partes similares se designan con números similares. En esta modalidad, la capa de barrera porosa 22 disminuye en espesor desde el primer extremo 16 hasta el segundo extremo 18 del módulo reformador 10C. Esto es para controlar la velocidad de reacción de la reacción de reformado en la capa de catalizador 24 longitudinalmente a lo largo del módulo reformador 10C, asegurando que haya una capa de barrera 22 más gruesa en el primer extremo 16 que en el segundo extremo 18 de manera que la difusión a través de la capa de barrera porosa 22 es más rápida en el segundo extremo 18 que en el primer extremo 16, de manera que los gradientes de temperatura longitudinalmente a lo largo del módulo reformador 10C se reducen o minimizan.

La capa de barrera porosa 22 puede disminuir en espesor de manera escalonada en lugar de manera continua. La capa de barrera porosa 22 se puede producir inicialmente mediante la inmersión de sustancialmente la totalidad de la longitud del miembro de soporte hueco poroso 12 en un tanque que contiene el material de la capa de barrera, circonia estabilizada con itria, de manera que la totalidad de la superficie externa del miembro de soporte hueco poroso 12 se cubre por la capa de barrera porosa 22. A continuación, el miembro de soporte hueco poroso 12 se sumerge secuencialmente en el tanque que contiene el material de la capa de barrera, circonia estabilizada con itria, en distancias progresivamente más cortas de manera que una longitud cada vez menor del miembro de soporte hueco poroso 12 se cubre por la capa de barrera porosa 22 para producir el cambio escalonado en el espesor de la capa de barrera porosa 22.

Una alternativa adicional es sumergir el miembro de soporte hueco poroso 12 de manera secuencial en los tanques que contienen los materiales de la capa de barrera con diferentes composiciones.

Una modalidad adicional de un módulo reformador 10D de acuerdo con la presente invención se muestra en la Figura 7. El módulo reformador 10D es sustancialmente el mismo que el mostrado en las Figuras 1 a 3 y las partes similares se designan con números similares. En esta modalidad, una capa de barrera no porosa 22 tiene unas aberturas 28 que se extienden a través de esta y el número de aberturas 28 y/o las dimensiones de las aberturas 28 cambian desde el primer extremo 16 hasta el segundo extremo 18 de manera que el área total de las aberturas 28 en el primer extremo 16 es menor que el área total de las aberturas 28 en el segundo extremo 18 y el área total de las aberturas 28 aumenta desde el primer extremo 16 hasta el segundo extremo 18 del módulo reformador 10D. Nuevamente, esto es para controlar la velocidad de reacción de la reacción de reformado en la capa de catalizador 24 longitudinalmente a lo largo del módulo reformador 10D, de manera que la difusión a través de la capa de barrera 22 es más rápida en el segundo extremo 18 que en el primer extremo 16, de manera que los gradientes de temperatura longitudinalmente a lo largo del módulo reformador 10D se reducen o minimizan.

Alternativamente, la capa de catalizador 24 puede tener una menor actividad en el primer extremo 16 que en el segundo extremo 18 del módulo reformador 10.

Una modalidad adicional de un módulo reformador 10E de acuerdo con la presente invención se muestra en la Figura 8. El módulo reformador 10E es sustancialmente el mismo que el mostrado en las Figuras 1 a 3 y las partes similares se designan con números similares. En esta modalidad, un miembro de soporte hueco no poroso 12 tiene unas aberturas 30 que se extienden a través de este y el número de aberturas 30 y/o las dimensiones de las aberturas 30 cambian

5 desde el primer extremo 16 hasta el segundo extremo 18 de manera que el área total de las aberturas 30 en el primer extremo 16 es menor que el área total de las aberturas 30 en el segundo extremo 18 y el área total de las aberturas 30 aumenta desde el primer extremo 16 hasta el segundo extremo 18 del módulo reformador 10E. Existe una capa de barrera porosa 22. Nuevamente, esto es para controlar la velocidad de reacción de la reacción de reformado en la capa de catalizador 24 longitudinalmente a lo largo del módulo reformador 10E, de manera que la difusión a través de la capa de barrera 22 es más rápida en el segundo extremo 18 que en el primer extremo 16, de manera que los gradientes de temperatura longitudinalmente a lo largo del módulo reformador 10E se reducen o minimizan. El miembro de soporte hueco no poroso 12 comprende preferiblemente alúmina, pero puede comprender espinela de aluminato de magnesio densa no porosa, circonia estabilizada con itria densa no porosa, carburo de silicio denso no poroso, etc. Un miembro de soporte hueco de alúmina es más fuerte.

10 Puede ser posible prescindir de la capa de barrera en algunas circunstancias, por ejemplo en la Figura 8.

15 Las ventajas de la presente invención son que al proporcionar la capa de catalizador sobre la superficie exterior del miembro de soporte hueco, la distribución del catalizador se puede controlar con mayor precisión y por consiguiente se puede lograr una distribución no uniforme del catalizador. Además, también se puede proporcionar una capa de barrera de manera más fácil entre el miembro de soporte hueco y la capa de catalizador, la distribución de la capa de barrera se puede controlar con mayor precisión y por consiguiente se puede lograr una distribución no uniforme de la capa de barrera. Las superficies exteriores del miembro de soporte hueco se pueden mantener uniformes y planas, lo que facilita una capa depositada uniforme y continua. Además, en las capas se pueden inspeccionar más fácilmente los defectos, grietas y el grosor, etc. Sólo se proporciona la capa de sellado entre el entorno externo, que proporciona el calor para la reacción de reformado, y la capa de catalizador donde ocurre la reacción de reformado y esto proporciona una barrera térmica baja contra la transferencia de calor a la capa de catalizador.

20 Como una posibilidad adicional, el módulo reformador puede formar parte de la pila de combustible de óxido sólido como se describe en la solicitud internacional de patente publicada con el núm. W003010847A, publicada el 6 de febrero de 2003. En ese caso, una porción de una o ambas de las superficies externas del módulo reformador tiene una capa de barrera, una capa de catalizador y una capa de sellado y el resto de una o ambas de las superficies externas también puede tener una o más celdas de combustible de óxido sólido.

30 Aunque la presente invención se ha descrito con referencia a su uso con celdas de combustible de óxido sólido, también puede ser posible usar la presente invención con otras celdas de combustible y generalmente para el reformado con vapor o la combustión catalítica.

**REIVINDICACIONES**

- 5 1. Un módulo reformador (10) que comprende un miembro de soporte hueco (12) que tiene al menos un pasaje (14) que se extiende longitudinalmente a través de este, medios para suministrar un combustible hacia al menos un pasaje, el miembro de soporte hueco (14) que tiene una superficie externa (20), **caracterizado porque** una capa de catalizador de reformado (24) se dispone sobre al menos una porción de la superficie externa (20) del miembro de soporte hueco (12) y una capa de sellado hermético al gas (26) se dispone sobre la capa de catalizador (24) y la superficie externa (20) del miembro de soporte hueco (12) distinta de al menos una porción de la superficie externa (20) del miembro de soporte hueco (12).
- 10 2. Un módulo reformador como se reivindica en la reivindicación 1 donde una capa de barrera (22) se dispone sobre al menos una porción de la superficie externa (20) del miembro de soporte hueco (12) y la capa de catalizador (24) se dispone sobre la capa de barrera (22).
- 15 3. Un módulo reformador como se reivindica en la reivindicación 2 donde una capa de barrera (22) se dispone sustancialmente sobre la totalidad de la superficie externa (20) del miembro de soporte hueco (12).
- 20 4. Un módulo reformador como se reivindica en la reivindicación 3 donde una capa de catalizador (24) se dispone sobre la capa de barrera (22) en cada una de una pluralidad de regiones de la superficie externa (20) del miembro de soporte hueco (12), la capa de sellado (26) se dispone sobre la capa de catalizador (24) en cada una de las regiones de la superficie externa (20) del miembro de soporte hueco (12) que tiene una capa de catalizador (24) y sobre la capa de barrera (22) y el miembro de soporte hueco (12) en las regiones de la superficie externa (20) del miembro de soporte hueco (12) distintas de la pluralidad de regiones.
- 25 5. Un módulo reformador como se reivindica en la reivindicación 4 donde las capas de catalizador (24) en la pluralidad de regiones se separan longitudinalmente del miembro de soporte hueco (12).
- 30 6. Un módulo reformador como se reivindica en la reivindicación 4 o la reivindicación 5 donde las capas de catalizador (24) en las regiones tienen diferentes áreas.
- 35 7. Un módulo reformador como se reivindica en la reivindicación 6 donde las capas de catalizador (24) en la pluralidad de regiones aumentan en área longitudinalmente desde un primer extremo (16) hasta un segundo extremo (18) del miembro de soporte hueco (12).
- 40 8. Un módulo reformador como se reivindica en la reivindicación 7 donde la capa de catalizador (24) se dispone sobre sustancialmente la totalidad de la capa de barrera (22), la capa de barrera (22) tiene un espesor diferente en las diferentes regiones.
- 45 9. Un módulo reformador como se reivindica en la reivindicación 8 donde la capa de barrera (22) disminuye en espesor desde un primer extremo (16) hasta un segundo extremo (18) del miembro de soporte hueco (12).
- 50 10. Un módulo reformador como se reivindica en la reivindicación 8 donde la capa de barrera (22) tiene unas aberturas (28) pasantes y el área total de la sección transversal de las aberturas (28) en la capa de barrera (22) es diferente en las diferentes regiones.
- 55 11. Un módulo reformador como se reivindica en la reivindicación 9 donde el área total de la sección transversal de las aberturas (28) en la capa de barrera (22) en las diferentes regiones aumenta desde un primer extremo (16) hasta un segundo extremo (18) del miembro de soporte hueco (12).
- 60 12. Un módulo reformador como se reivindica en la reivindicación 11 donde las dimensiones de las aberturas (28) aumentan y/o el número de aberturas (28) aumenta.
13. Un módulo reformador como se reivindica en la reivindicación 3 donde la capa de catalizador (24) tiene una actividad diferente en las diferentes regiones.
14. Un módulo reformador como se reivindica en la reivindicación 13 donde las capas de catalizador (24) en las diferentes regiones aumentan en actividad desde un primer extremo (16) hasta un segundo extremo (18) del miembro de soporte hueco (12).
15. Un módulo reformador como se reivindica en la reivindicación 7, reivindicación 9, reivindicación 11, reivindicación 12 o reivindicación 14 donde el primer extremo (16) es una entrada para un combustible de hidrocarburos que se va a reformar y el segundo extremo (18) es una salida para el combustible reformado.

- 5
16. Un módulo reformador como se reivindica en cualquiera de las reivindicaciones 1 a 15 donde el miembro de soporte hueco (12) comprende una pluralidad de pasajes (14) que se extienden longitudinalmente.
17. Un módulo reformador como se reivindica en cualquiera de las reivindicaciones 2 a 16 donde el miembro de soporte hueco (12) comprende dos superficies externas sustancialmente paralelas (20) y la capa de barrera (22), la capa de catalizador (24) y la capa de sellado (26) se disponen sobre ambas superficies externas paralelas (20).
- 10
18. Un módulo reformador como se reivindica en cualquiera de las reivindicaciones 1 a 17 donde el miembro de soporte hueco (12) es poroso.
19. Un módulo reformador como se reivindica en cualquiera de las reivindicaciones 1 a 17 donde el miembro de soporte hueco (12) es no poroso y tiene una pluralidad de aberturas (30) que se extienden a través de este.
- 15
20. Un módulo reformador como se reivindica en la reivindicación 19 donde el área total de la sección transversal de las aberturas (30) en el miembro de soporte hueco no poroso (12) es diferente en las diferentes regiones.
- 20
21. Un módulo reformador como se reivindica en la reivindicación 20 donde el área total de la sección transversal de las aberturas (30) en el miembro de soporte hueco no poroso (12) en las diferentes regiones aumenta desde un primer extremo (16) hasta un segundo extremo (18) del miembro de soporte hueco (12)
22. Un módulo reformador como se reivindica en la reivindicación 21 donde las dimensiones de las aberturas (30) aumentan y/o el número de aberturas (30) aumenta.

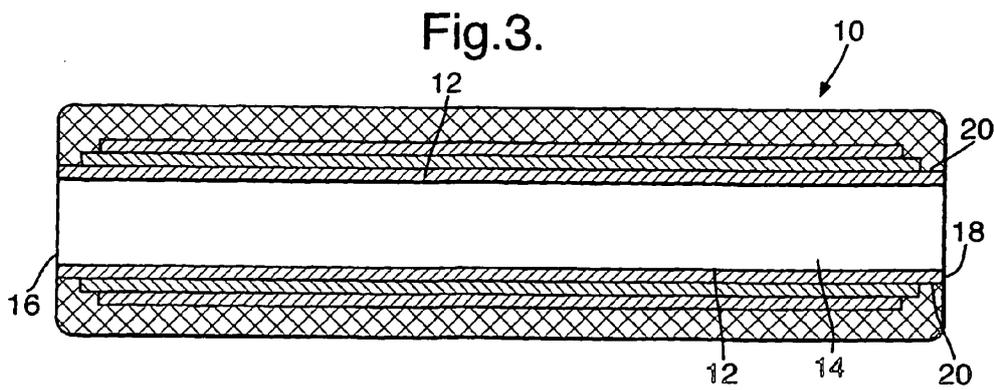
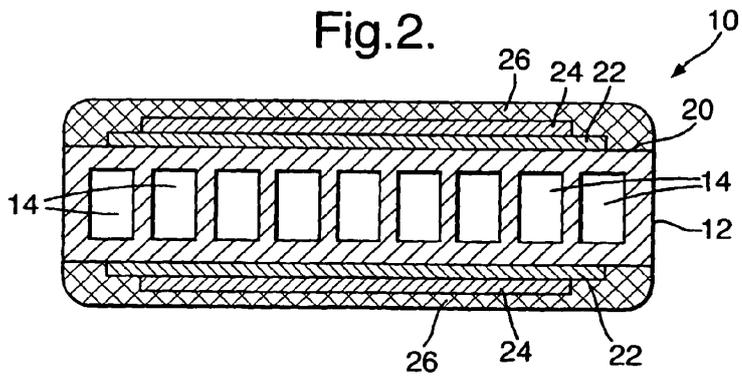
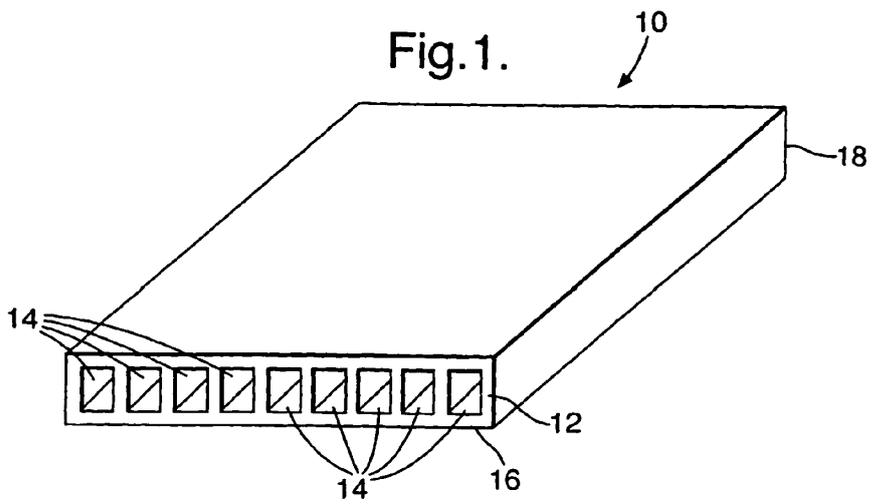


Fig.4.

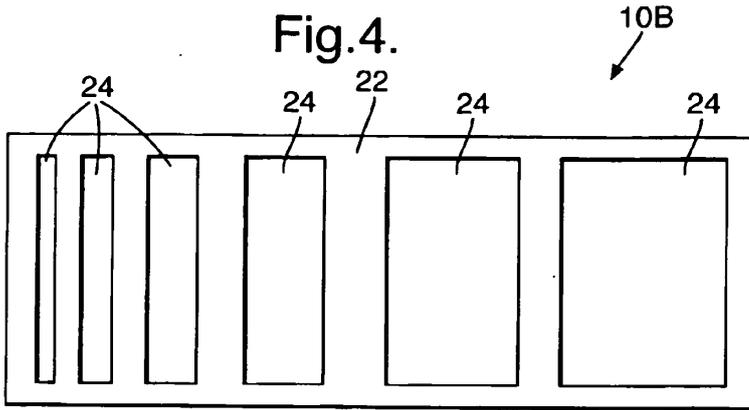


Fig.5.

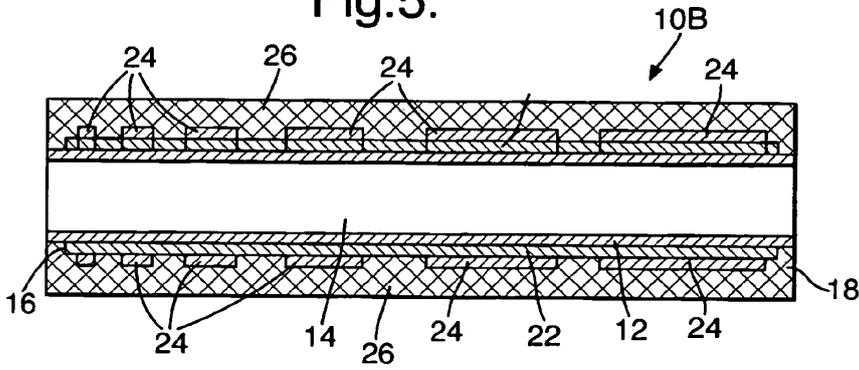


Fig.6.

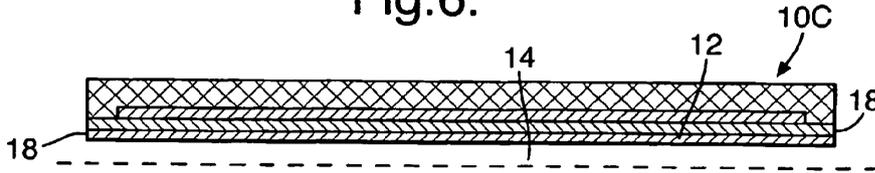


Fig.7.

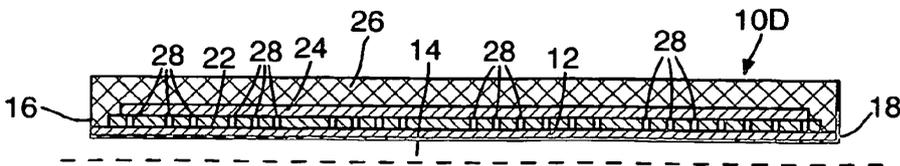


Fig.8.

