

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 681 121**

21 Número de solicitud: 201730303

51 Int. Cl.:

**C07C 7/04** (2006.01)

**C12P 7/02** (2006.01)

12

SOLICITUD DE PATENTE

A2

22 Fecha de presentación:

**08.03.2017**

43 Fecha de publicación de la solicitud:

**11.09.2018**

71 Solicitantes:

**ABENGOA RESEARCH, S.L. (100.0%)**  
**C/ Energía Solar, 1 Campus Palmas Altas**  
**41014 Sevilla ES**

72 Inventor/es:

**BLÁZQUEZ ESCUDERO, Carlos;**  
**HIDALGO CANDAU, Concepción;**  
**BLÁZQUEZ ELENA, Patricia;**  
**SASTRE GARCÍA, Emilia;**  
**CACHAZA GIANZO, Elena y**  
**RAMOS MARTÍN, Juan Luis**

74 Agente/Representante:

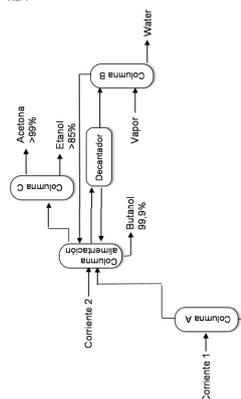
**PONS ARIÑO, Ángel**

54 Título: **PROCEDIMIENTO DE OBTENCIÓN DE BUTANOL PURO**

57 Resumen:

Procedimiento de obtención de butanol puro.  
La presente invención se refiere a un procedimiento de obtención de butanol puro en la parte inferior de una primera columna de destilación a partir de un caldo de fermentación que comprende butanol, agua, etanol y acetona.

FIG. 1



ES 2 681 121 A2

## **PROCEDIMIENTO DE OBTENCIÓN DE BUTANOL PURO**

### **DESCRIPCIÓN**

5 La presente invención se refiere a un procedimiento de obtención de butanol puro en la parte inferior de una primera columna de destilación a partir de un caldo de fermentación que comprende butanol, agua, etanol y acetona.

Por tanto, la invención se podría encuadrar en el campo del aprovechamiento  
10 industrial de sub-productos y la valorización de los mismos.

### **ESTADO DE LA TÉCNICA**

La concentración de butanol en caldos de fermentación es inferior al 2 %, por lo que  
15 su recuperación por técnicas clásicas es muy costosa energéticamente. Diferentes esquemas de destilación han sido propuestos para la separación de butanol, sin embargo, sus consumos energéticos son elevados.

En los documentos [“Synthesis and design of new hybrid configurations for biobutanol  
20 purification” Massimiliano Errico et al., Computers and Chemical Engineering 84 (2016) 482-493] y [“Extractive Fermentation of Acetone and Butanol: Process Design and Economic Evaluation” Steven Roffler et al., Biotechnology progress, Volume 3, Issue 3 (1987) 131–140] se describen diferentes configuraciones formadas por 5 columnas de destilación y un decantador al final del proceso para la purificación de  
25 biobutanol obtenido del proceso acetona-butanol-etanol (ABE) con un gasto energético de más de 22 MJ/kg de butanol recuperado.

Una de las realizaciones descritas en el documento [“Evaluation of Different Process  
30 Designs for Biobutanol Production from Sugarcane Molasses” Abraham Blignault van der Merwe, Thesis (2010), University of Stellenboschse] describe una configuración que comprende 4 columnas de destilación y con la que se obtiene un butanol del 99,9 % de pureza y se recupera 95,6 % del total del butanol. En esta configuración el etanol no se recupera, se trata como un deshecho.

35 El uso de decantadores en pasos intermedios de los procesos de recuperación de biobutanol ya se ha descrito anteriormente en la bibliografía como mejora en el

procedimiento de recuperación de butanol puro mediante destilación. Sin embargo, se centra en la purificación únicamente del butanol.

5 Por ejemplo en el documento [“Process Alternatives for Biobutanol Purification: Design and Optimisation” Eduardo Sánchez-Ramírez et al., Ind. Eng. Chem. Res., 54 (2015) 351.358], concretamente en una de sus realizaciones, se describe una configuración con cuatro columnas de destilación y un decantador pero en la que sólo se consigue purificar el butanol. Una configuración similar se describe en WO2009013160.

10 Por tanto, es necesario seguir desarrollando procesos de recuperación de butanol puro a partir de caldos de fermentación más eficientes y cuyos subproductos se puedan valorizar.

## DESCRIPCIÓN DE LA INVENCION

15

El método de recuperación del butanol procedente de un caldo de fermentación objeto de la presente invención consiste en un tren de columnas de separación (destilación) integrado con una etapa de separación líquido-líquido (decantación). La principal ventaja de la invención reside en la ubicación de la etapa de separación líquido-líquido (decantación). En la presente invención, la etapa de separación líquido-líquido, cuyo principal objeto es la rotura del azeótropo butanol-agua, se localiza integrada en la segunda columna de destilación denominada columna de destilación de alimentación o Feed Stripping Column (FSC) en inglés. La principal ventaja de la presente invención es la simplificación del tren de destilación, la disminución del tamaño de los equipos asociados, así como la disminución del consumo energético.

20 Por tanto, en un primer aspecto, la presente invención se refiere a un procedimiento de obtención de butanol puro en la parte inferior de una primera columna de destilación a partir de un caldo de fermentación que comprende butanol, agua, etanol y acetona, donde dicho procedimiento comprende las siguientes etapas:

30 a. separar una corriente de caldo de fermentación en una corriente que comprende una primera corriente inicial formada por el azeótropo formado por butanol y el agua y una segunda corriente inicial que comprende etanol y acetona, dicha separación se lleva a cabo mediante destilación a una presión de 0,5 bar a 1 bar y una temperatura de 40 °C a 135 °C en una primera columna de destilación;

- 5 b. decantar la primera corriente inicial que comprende el azeótropo formado por butanol y el agua obtenida en la etapa (a) a una presión de 0,5 bar a 1 bar y una temperatura de 40 °C a 135 °C en un decantador en dos corrientes de decantación: la primera corriente de decantación rica en butanol y una segunda corriente de decantación rica en agua y pobre en butanol
- 10 c. reintroducir, en la parte inferior de la columna de destilación de la etapa (a), la primera corriente líquida de decantación rica en butanol obtenida en la etapa (b).
- 15 d. separar la segunda corriente de decantación rica en agua y pobre en butanol obtenida en la etapa (b) en dos corrientes líquidas una primera corriente de destilación rica en butanol y pobre en agua, y una segunda corriente de destilación rica en agua y pobre en butanol, dicha separación se lleva a cabo mediante destilación a una presión de 0,5 bar a 1 bar y una temperatura de 40 °C a 135 °C en una segunda columna de destilación e introducir una corriente de vapor en dicha columna;
- 20 e. reintroducir en la parte superior de la primera columna de destilación la primera corriente líquida de destilación rica en butanol y pobre en agua obtenida en la etapa (d) y
- f. extraer la corriente butanol puro de la parte inferior de la primera columna de destilación.

En la presente invención el “caldo de fermentación” se obtiene por fermentación de azúcares. Es posible utilizar caldos obtenidos a partir de distintos azúcares y procesos de fermentación siempre que el caldo final contenga acetona, etanol y butanol. Generalmente, la acetona, el etanol y el butanol se encuentra en las concentraciones indicadas a continuación:

- Acetona 0,1 % w/w - 15 % w/w
- Etanol 0,1 % w/w - 5 % w/w
- Butanol 0,1 % w/w - 22 %w/w

En la presente invención se entiende por “azeótropo” como aquel líquido compuesto por dos o más líquidos miscibles cuyo punto de ebullición es constante y que se comportan como si de un solo componente se tratara. En este caso, el butanol y el agua forman un azeótropo que presenta un rango de punto de ebullición de entre 100 °C y 118 °C.

- La etapa (a) del procedimiento de la presente invención sirve para separar la mezcla de butanol, agua, acetona y etanol presentes en la corriente de caldo de fermentación libre de sólidos separados en una etapa previa en dos corrientes iniciales, una primera corriente inicial de butanol y agua formando un azeótropo y una segunda corriente inicial de etanol y acetona. En esa misma columna de destilación, concretamente en la parte inferior de la primera columna de destilación, se va acumulando butanol más puro y libre de agua.
- 5
- 10 En la etapa de decantación (b) del procedimiento de la presente invención se incorpora un decantador a la primera columna de destilación descrita en (a), concretamente a la altura en la existe un plato de destilación donde la concentración acetona y etanol sea tan baja que se pueda de separar en dos fases líquidas rompiendo el azeótropo heterogéneo entre el butanol y el agua. La concentración de acetona no debe superar un valor de entre 0,05 % - 0,5 %, la concentración de etanol un valor de entre 1 % - 4 %. Se obtienen dos corrientes de decantación: la primera corriente de decantación rica en butanol y una segunda corriente de decantación rica en agua y pobre en butanol.
- 15
- 20 En la etapa (c) del procedimiento de la presente invención se procede a reintroducir la primera corriente líquida de decantación rica en butanol obtenida del decantador de la etapa (b) en la parte inferior de la primera columna (también llamada sección de agotamiento) obteniéndose butanol de elevada pureza.
- 25 En la etapa (d) del procedimiento de la presente invención la segunda corriente de decantación rica en agua y pobre en butanol, obtenida en la etapa (b), se lleva a una segunda columna de destilación para separar así dos corrientes líquidas una primera corriente de destilación rica en butanol y pobre en agua, y una segunda corriente de destilación rica en agua y pobre en butanol.
- 30
- En la etapa (e) del procedimiento de la presente invención se dirige la primera corriente líquida de destilación rica en butanol hacia la parte superior de la primera columna de destilación.
- 35 La última etapa del procedimiento, la etapa (f), se refiere a la extracción de la corriente de butanol puro de la parte inferior de la primera columna de destilación.

En una realización preferida, el procedimiento de la presente invención comprende las siguientes etapas previas a la etapa (a):

5 a'. separar los sólidos disueltos en una corriente de fermentación que comprende butanol, sólidos y agua mediante destilación a una presión de 0,5 bar a 1 bar y una temperatura de 40 °C a 135 °C

b'. introducir la corriente que comprende butanol, acetona, etanol y agua obtenida en la etapa (a') en la primera columna de destilación.

10 En dicha realización los sólidos contenidos en el caldo de fermentación son separados del mismo mediante evaporación, aportando el calor requerido para evaporar el caldo de fermentación en el calderín y obteniendo por fondos de la columna los sólidos (etapa (a')). En dicha realización preferida se obtiene una corriente que comprende butanol, acetona, etanol y agua que se introduce en la primera columna de destilación.

15

En otra realización preferida, el procedimiento de la presente invención comprende las siguientes etapas adicionales de separación de acetona y etanol a partir de la segunda corriente inicial que comprende las siguientes etapas:

20 a''). separar la segunda corriente inicial de acetona y etanol obtenida en la columna de destilación de la etapa (a) en dos corrientes: una primera corriente, rica en acetona, y una segunda corriente, rica en etanol, dicha separación se lleva a cabo mediante destilación a una presión de 0,5 bar a 1 bar y una temperatura de 40 °C a 135 °C en una tercera columna de destilación;

25 b''). extraer la primera corriente de acetona pura por la parte superior de la tercera columna de destilación,

c''). opcionalmente purificar la segunda corriente, rica en etanol obtenida en la etapa (a'') mediante tamices moleculares, y

d''). extraer la corriente de etanol obtenida en la etapa b'' o en la etapa c''.

30

A lo largo de la descripción y las reivindicaciones la palabra "comprende" y sus variantes no pretenden excluir otras características técnicas, aditivos, componentes o pasos. Para los expertos en la materia, otros objetos, ventajas y características de la invención se desprenderán en parte de la descripción y en parte de la práctica de la invención. Los siguientes ejemplos y figuras se proporcionan a modo de ilustración, y no se pretende que sean limitativos de la presente invención.

35

## BREVE DESCRIPCIÓN DE LAS FIGURAS

FIG. 1 Obtención de Butanol con una decantación integrada en el tren de destilación.

5

FIG. 2 Diagrama ternario para la alimentación del decantador del ejemplo 1.

FIG. 3. Esquema de destilación con ejemplo particular de las concentraciones en cada una de las corrientes para la obtención de butanol de la presente invención.

10

FIG. 4 Esquema de destilación para la obtención de butanol con configuración clásica de cinco columnas de destilación.

Fig. 5 Esquema de destilación para la obtención de butanol con otra configuración de cinco columnas de destilación, con separación de la acetona y el butanol en la misma columna.

15

## EJEMPLOS

20 A continuación se ilustrará la invención mediante unos ensayos realizados por los inventores, que ponen de manifiesto la efectividad del producto de la invención.

### ***Ejemplo 1: Obtención de Butanol con una decantación integrada en el tren de destilación.***

25

Una corriente mezcla de salida de fermentación (1) con un 0,61% (en peso) de butanol y otra mezcla de solventes ABE-agua (2) que contiene un 23,76% p/p de butanol (tabla 1). La corriente 1 es introducida en la primera columna de destilación, columna A o stripper A en inglés, donde los solventes son separados de los sólidos con una eficacia de separación del 100%. La recuperación de solventes por cabeza de la columna A es del 100%. La columna A, consta de 30 etapas y opera a 0,6 bares y una temperatura de 92°C en el calderín. El consumo energético de dicha columna es 6,24 MJ/kg de butanol (tabla 2).

30

35 La tabla 1 recoge los datos de composición de las corrientes de alimentación al proceso:

	Alimentación		
	Corriente 1	Corriente 2	Corriente 3
Temperatura, °C	32,00	32,00	170,00
Presión, bar	1,01	1,01	1,01
Glucosa	1559,95	0,00	0,00
Acetona	437,13	4549,63	0,00
Butanol	1302,82	8395,13	0,00
Etanol	569,98	1078,11	0,00
Butírico	214,28	0,00	0,00
Acético	214,28	0,00	0,00
Láctico	214,28	0,00	0,00
Sólidos no fermentables	18248,00	0,00	0,00
Agua	191357,58	21309,48	3000,00
Caudal Total, kg/h	214118,30	35332,35	30000,00

5 Por fondos obtenidos en esta primera columna A se recupera el 87,10% del agua de proceso, con una pureza del 90,2%. Es lo que denominamos vinazas ya que previamente a ser reutilizada ha de ser separada de los sólidos no fermentados.

10 La corriente de cabezas con un 22,40% en butanol, 7,50% en acetona y 9,80% en etanol, junto con la corriente mezcla salida del sistema de extracción (2) con un 23,8% de butanol (tabla 1), son introducidas en la segunda columna de destilación denominada columna de destilación de alimentación, o en inglés "Feed Stripping Column" y sus siglas FSC. Dicha columna de destilación de alimentación consta de 30 etapas y opera a 0,5 bares en cabezas y una temperatura de 132°C en el calderín (tabla 2).

15 Como se mencionaba anteriormente, se espera la formación de dos fases inmiscibles en la corriente 2, pero la diferencia en la composición de agua y butanol entre la fase orgánica y la fase acuosa no es lo suficientemente grande para romper el azeótropo (Figura 2). La razón de este comportamiento es la elevada concentración de acetona de dicha corriente.

20

Cuando el contenido de acetona se reduce lo suficiente, entonces es posible romper el azeótropo heterogéneo butanol-agua con la separación de fases producida por decantación (Figura 3.b). La fase rica en butanol tiene un contenido del 65% (peso) del mismo, mientras que la fase rica en agua posee una concentración de butanol del 10%. La fase orgánica rica en butanol es devuelta a la columna de destilación de alimentación, mientras que la fase rica en agua se introduce en una nueva columna de destilación (columna B o *Stripper B* en inglés).

5

10 La etapa de extracción es aquella que posee una composición de etanol-acetona tal, que permita la separación de la corriente en dos fases y rompa el azeótropo heterogéneo entre el agua y el butanol. La extracción se realiza en la etapa 20. Las condiciones de operación del decantador son a presión 0,6 bares y 79,2°C.

15 La corriente rica en agua es introducida en la columna B donde se recupera por fondos el 87,2% del agua del sistema con una pureza del 90,18%. Dicha columna B consta de 40 etapas y opera a 0,6 bares en cabezas y una temperatura de 60°C en el calderín (tabla 2). En dicha columna se consigue una recuperación del 100% (masa) de butanol, y del 99,6% (masa) del etanol. Por cabezas se obtiene la concentración azeotrópica de butanol a 0,6 bares (46,1% p/p) que es recirculada a la columna de destilación de alimentación.

20

Por fondos de la columna de destilación de alimentación se obtienen purezas de butanol al 99,90% (masa), siendo el consumo energético en el calderín de 2,72 MJ/Kg de butanol.

25

La corriente obtenida por cabezas del *Feed Strip Column* contiene un 73,3 % (p/p) de acetona y un 24,2% (p/p) de etanol. Dicha corriente es introducida en una cuarta columna de separación (columna C o *Stripper C* en inglés) donde se recupera el 99,63% (p/p) de la acetona que entra al sistema. La columna consta de 40 etapas de separación y opera a 0,5 bares, alcanzando una temperatura de 92°C en el calderín.

30

La tabla 2 recoge las principales condiciones de operación de cada una de las columnas del sistema para el ejemplo 1.

35

Columna	Columna A	Columna de destilación de alimentación	Columna B	Columna C
Nº platos	30,00	30,00	40,00	20,00
Diámetro estimado	3,50	2,90	2,00	0,09
Temperatura condensador, °C	82,00	31,00	36,00	81,00
Presión condensador, bar	0,60	1,00	0,50	0,60
Temperatura calderín, °C	92,00	132,00	65,00	92,00
Energía calderín, kJ/kg butanol	6,24	2,72	0,00	0,00
Caudal total vapor, kg/h	0,00	0,00	0,00	3000,00

La tabla 3 recoge las principales recuperaciones obtenidas en el sistema para el ejemplo 1.

Corrientes de productos	% Pureza	% Recuperación
Acetona	99,93	99,36
Etanol	91,58	99,94
Butanol	98,31	100
Agua	99,99	12,75
Vinazas	90,19	87,1

5

Comparado con los procesos tradicionales de separación de soluciones de acetona, butanol, etanol, esta configuración tiene como principal ventaja la simplificación del tren de destilación, la disminución del tamaño de los equipos asociados, así como la disminución del consumo energético.

- 10
- Los requerimientos energéticos equivalentes para esta nueva configuración son de 9,66 MJ/Kg de butanol. Como se puede apreciar, dicho consumo es menor que los reportados en estudios anteriores 24,4 MJ/Kg de butanol (Esquema I) o 22.4 MJ/kg de butanol (Esquema II) [Van der Merwe, A.B. et al., Fuel (2013) 105:451-8].

15

- Así mismo, dicho método ofrece una simplificación del tren de destilación disminuyendo el número de columnas requeridas a 4 en lugar de a 5.

En un ejemplo particular (simulado) las concentraciones en cada una de las corrientes estaría representada por la figura 3.

5 ***Ejemplo 2: Obtención de Butanol con una decantación al final del tren de destilación.***

El esquema típico de separación mediante destilación que emplea 5 torres, se representa en la figura 4. Con una configuración donde se obtienen las vinazas en los  
10 fondos de la primera columna, mientras por cabezas se obtiene butanol a una concentración en torno al 40% (p/p).

Por cabezas de la segunda columna se puede obtener acetona de alta pureza.

15 Los fondos de la segunda columna son alimentados a una tercera columna para la purificación de etanol.

La etapa de decantación se encuentra integrada al final del proceso de purificación de butanol, tras separar la acetona y/o el etanol del caldo de fermentación.

20

La fase acuosa del decantador se alimenta a una torre de recuperación de butanol, y la fase orgánica a una torre de purificación final para obtener el butanol.

El número de platos de las torres 1, 2, 3, 4 y 5 son 40, 30, 40, 10 y 10,  
25 respectivamente. Los requerimientos energéticos equivalentes son de 24,4 MJ/Kg de butanol.

***Ejemplo 3: Obtención de Butanol con una decantación al final del tren de destilación con otra configuración típica.***

30

En la segunda configuración típica de 5 columnas (Figura 5), se obtienen las vinazas en los fondos de la primera columna, mientras por cabezas se obtiene butanol a una concentración en torno al 40 % (p/p).

35 Por cabezas de la segunda columna se puede obtener acetona y etanol (Figura 5) y esta corriente irá destinada a una tercera columna para purificación de ambos.

Los fondos de la segunda torre son alimentados directamente al decantador donde la fase acuosa del decantador se alimenta a una torre de recuperación de butanol, y la fase orgánica a una torre de purificación final para obtener el butanol.

5

El número de platos de las torres 1, 2, 3, 4 y 5 son 40, 30, 40, 10 y 10, respectivamente. Los requerimientos energéticos equivalentes del esquema de configuración mostrados en la figura 5, son de 22,4 MJ/Kg de butanol.

10 La tabla 4 recoge los principales resultados obtenidos por esta nueva invención comparándolo con los resultados típicos [Van der Merwe, A.B. et al., Fuel (2013) 105:451-8].

Tabla 4: Datos comparativos

15

Resultados	Invencción	Ejemplo 2	Ejemplo 3
Consumo energético (MJ/kh ButOH)	9,66	24,40	22,40
Número de columnas	4	5	5

Nótese que en este cálculo de consumo energético en la invención se ha tenido en cuenta integración y en los ejemplos 2 y 3. Por tanto, la diferencia de consumo energético entre la invención y los ejemplos 2 y 3 no es debida únicamente a las diferencias en la configuración.

20

**REIVINDICACIONES**

1. Un procedimiento de obtención de butanol puro en la parte inferior de una primera columna de destilación a partir de un caldo de fermentación que comprende butanol, agua, etanol y acetona, donde dicho procedimiento comprende las siguientes etapas:
- a. separar una corriente de caldo de fermentación en una corriente que comprende una primera corriente inicial formada por el azeótropo formado por butanol y el agua y una segunda corriente inicial que comprende etanol y acetona, dicha separación se lleva a cabo mediante destilación a una presión de 0,5 bar a 1 bar y una temperatura de 40 °C a 135 °C en una primera columna de destilación;
  - b. decantar la primera corriente inicial que comprende el azeótropo formado por butanol y el agua obtenida en la etapa (a) a una presión de 0,5 bar a 1 bar y una temperatura de 40 °C a 135 °C en un decantador en dos corrientes de decantación: la primera corriente de decantación rica en butanol y una segunda corriente de decantación rica en agua y pobre en butanol;
  - c. reintroducir en la parte inferior de la columna de destilación de la etapa (a), la primera corriente líquida de decantación rica en butanol obtenida en la etapa (b).
  - d. separar la segunda corriente de decantación rica en agua y pobre en butanol obtenida en la etapa (b) en dos corrientes líquidas una primera corriente de destilación rica en butanol y pobre en agua, y una segunda corriente de destilación rica en agua y pobre en butanol, dicha separación se lleva a cabo mediante destilación a una presión de 0,5 bar a 1 bar y una temperatura de 40 °C a 135 °C en una segunda columna de destilación e introducir una corriente de vapor en dicha columna; y
  - e. reintroducir en la parte superior de la primera columna de destilación de la etapa (a) la primera corriente líquida de destilación rica en butanol y pobre en agua obtenida en la etapa (d) y
  - f. extraer la corriente butanol puro de la parte inferior de la primera columna de destilación.

35

2. El procedimiento según la reivindicación 1, donde dicho procedimiento además comprende las siguientes etapas previas a la etapa (a):
- 5 a'. separar los sólidos disueltos en una corriente de fermentación que comprende butanol, sólidos y agua mediante destilación a una presión de 0,5 bar a 1 bar; y una temperatura de 40 °C a 135 °C
- b'. introducir la corriente que comprende butanol, acetona, etanol y agua obtenida en la etapa (a') en la primera columna de destilación.
3. El procedimiento según cualquiera de las reivindicaciones 1 ó 2, que comprende
- 10 las siguientes etapas adicionales de separación de acetona y etanol a partir de la segunda corriente inicial que comprende las siguientes etapas;
- a'". separar la segunda corriente inicial de acetona y etanol obtenida en la columna de destilación de la etapa (a) en dos corrientes: un primera corriente, rica en acetona, y una segunda corriente, rica en etanol , dicha
- 15 separación se lleva a cabo mediante destilación a una presión de 0,5 bar a 1 bar y una temperatura de 40 °C a 135 °C en una tercera columna de destilación;
- b'". extraer la primera corriente de acetona pura por la parte superior de la tercera columna de destilación,
- 20 c'". opcionalmente purificar la segunda corriente, rica en etanol obtenida en la etapa (a'') mediante tamices moleculares, y
- d'". extraer la corriente de etanol obtenida en la etapa b'' o en la etapa c''.

25

FIG. 1

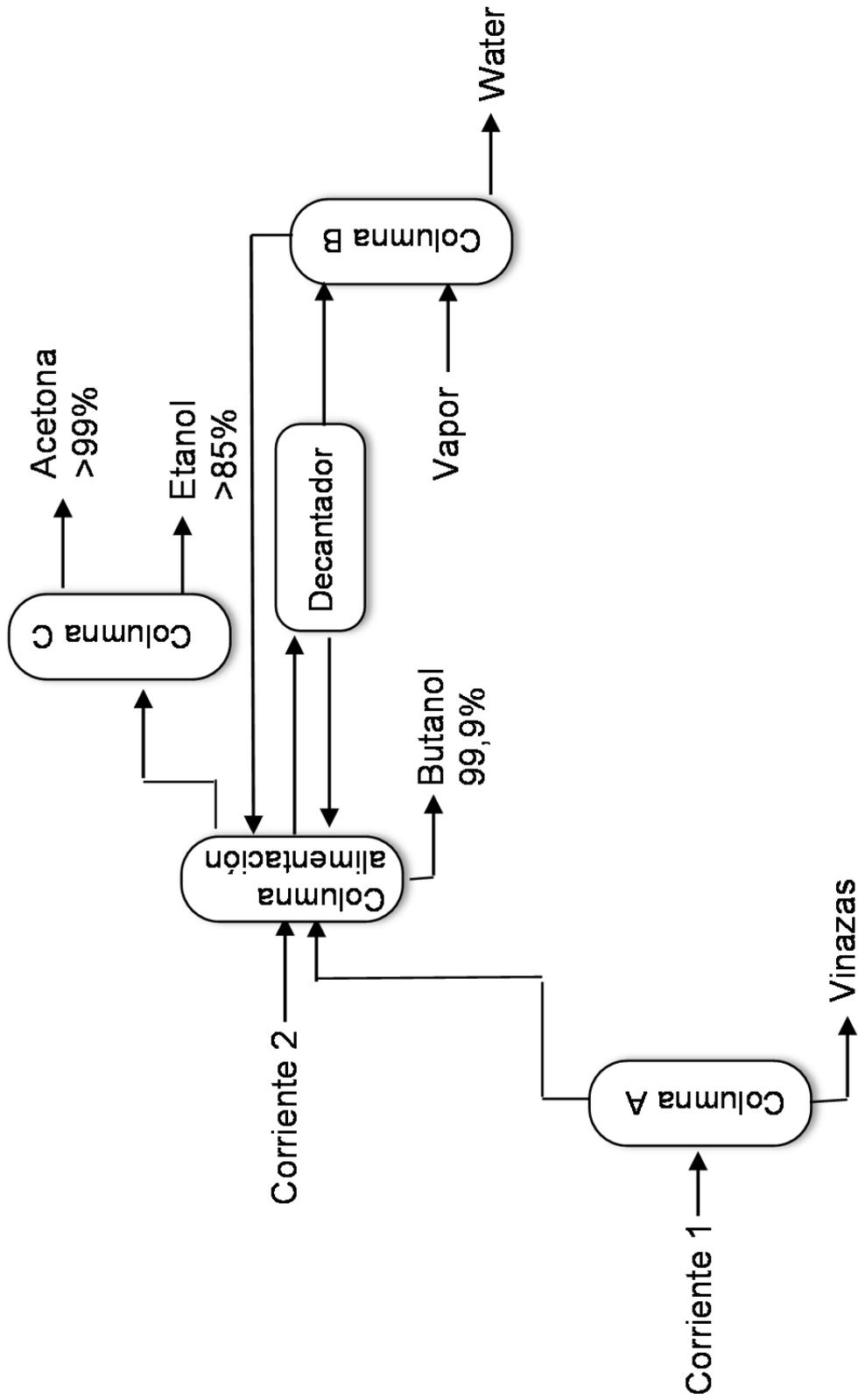


FIG. 2.

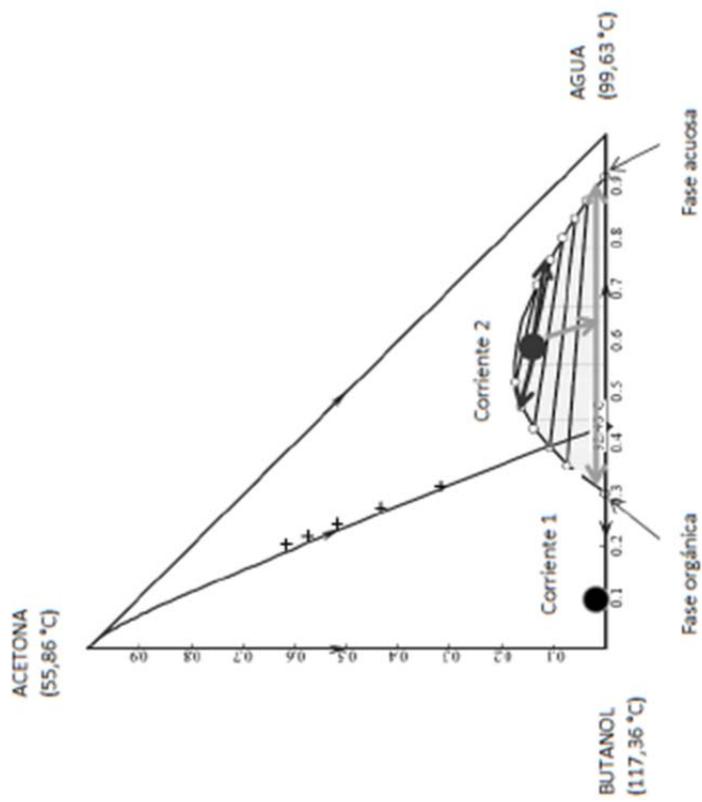
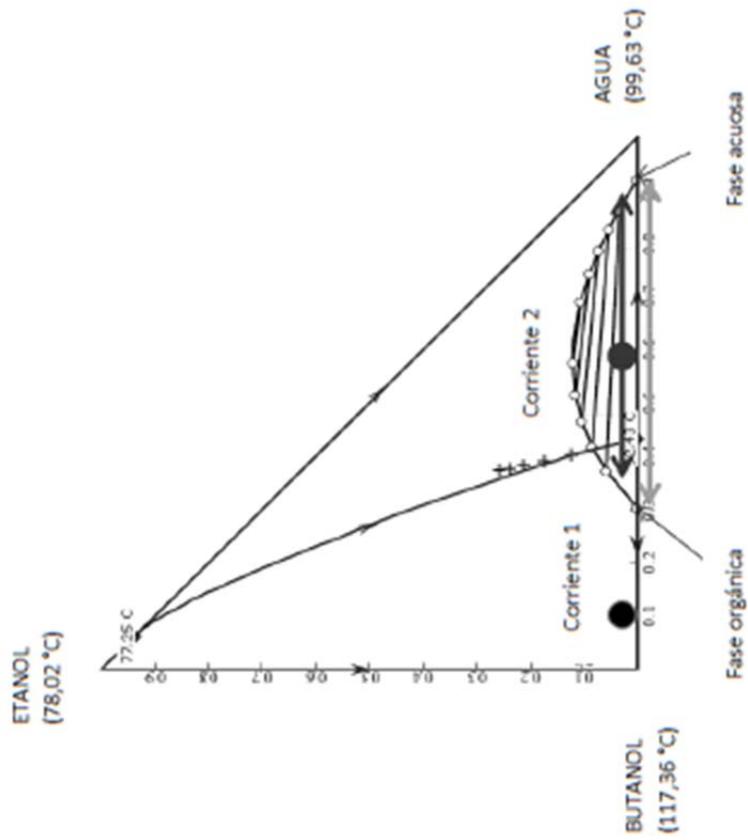


FIG. 3

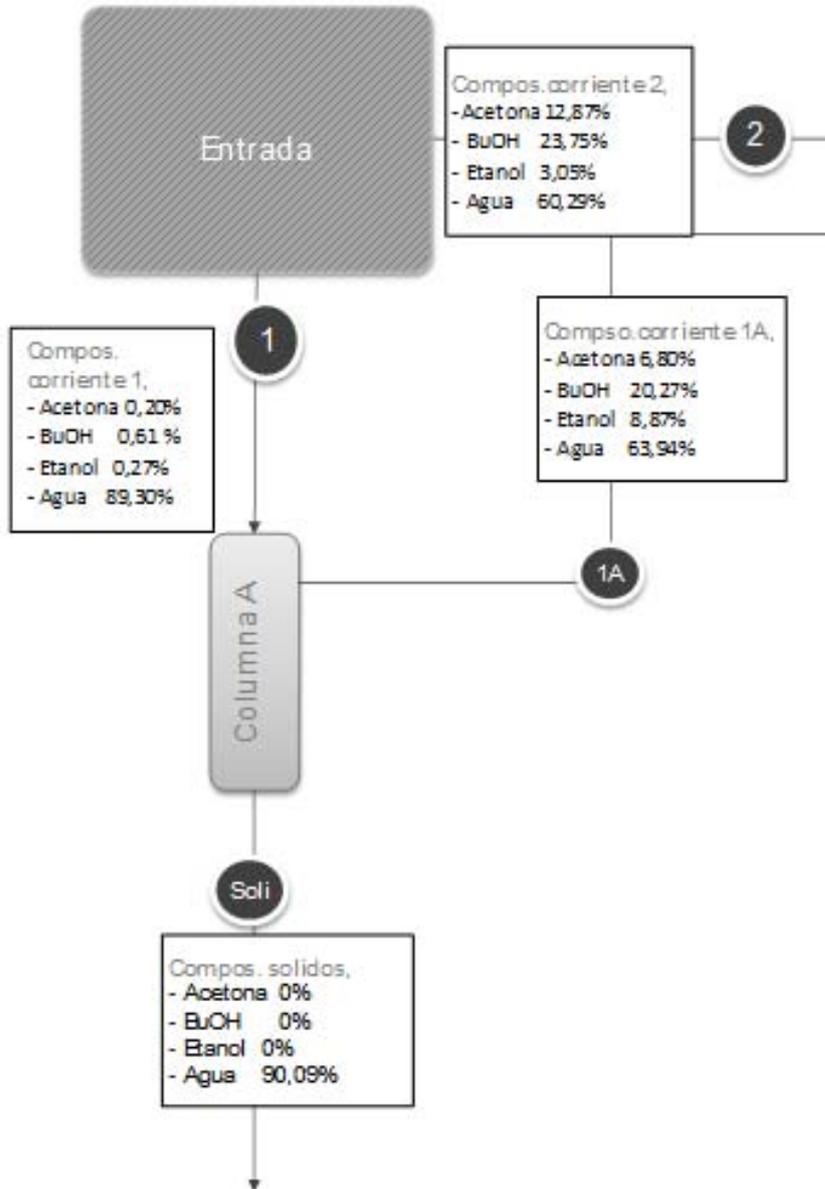


FIG. 3 cont.

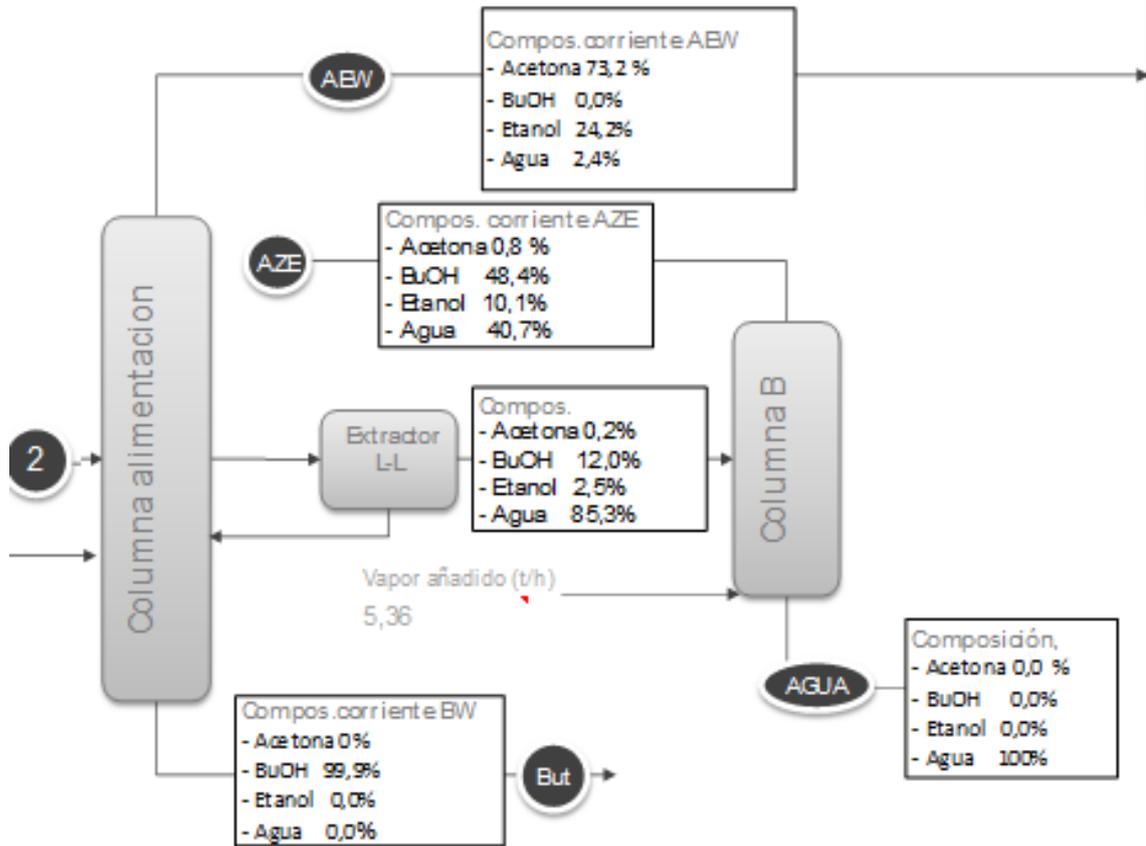


FIG. 3 cont.

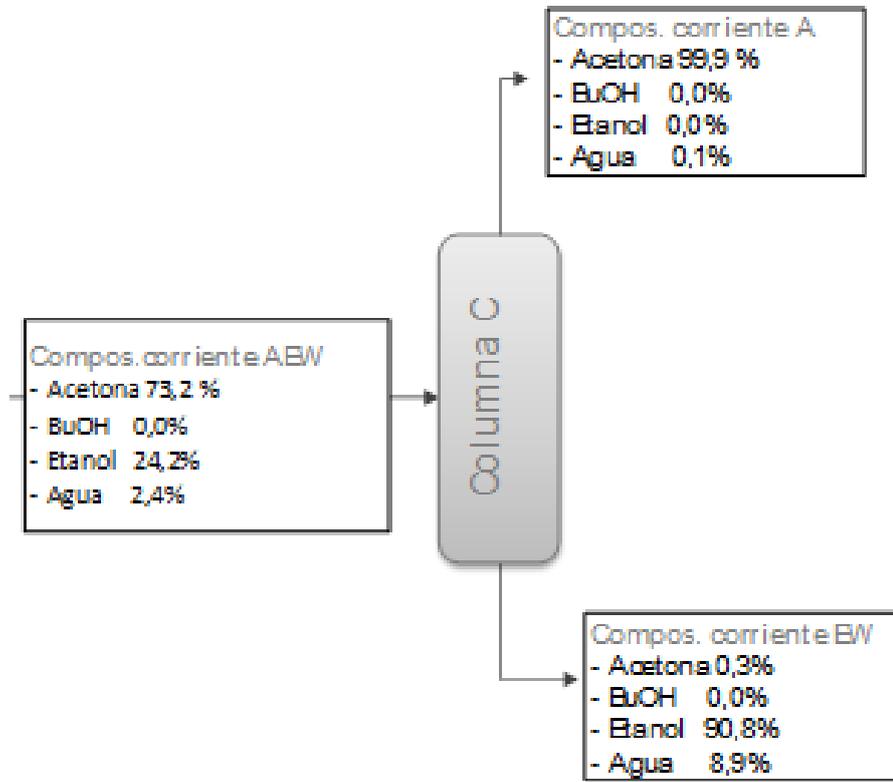


FIG. 4

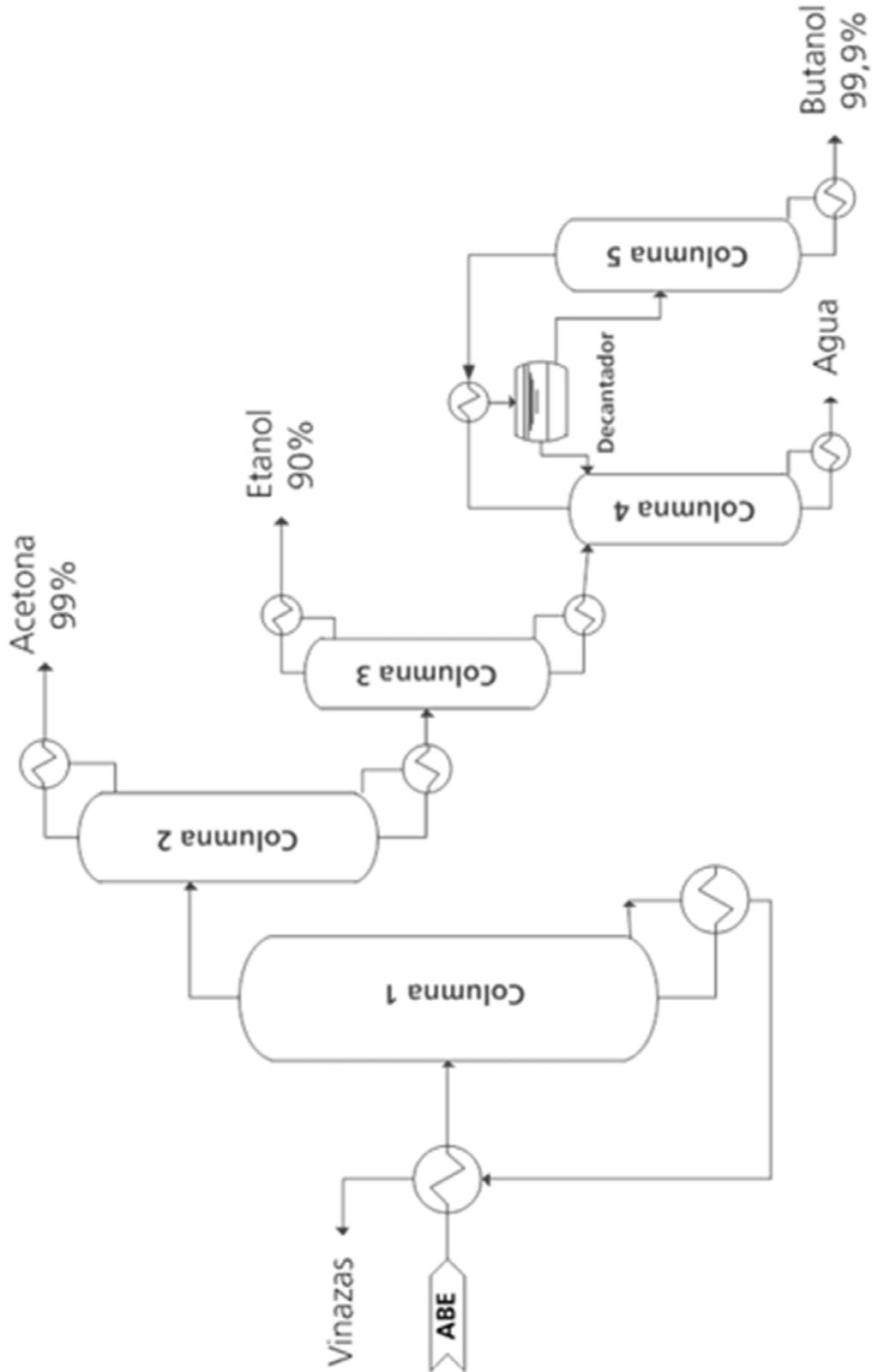


FIG. 5

