

12 SEP. 1964

P.- 27.360

U.S. Nº 300641



302096
302856

MEMORIA DESCRIPTIVA

que se presenta para unir a la solicitud

de

C E R T I F I C A D O D E A D I C I O N

formulada el 8 de Agosto de 1964, con el número 302.856

en

E S P A Ñ A

a nombre de KODAK S.A., entidad española establecida
en Irún 15, Madrid, por:

"MEJORAS INTRODUCIDAS EN EL OBJETO DE LA PATENTE PRIN-
CIPAL"

Nº 289.370 expedida el 9 de Enero de 1.964, por "Método
de copiar un documento".

La presente invención se refiere a métodos termo-
gráficos, y a materiales termosensibles, o sensibles
al calor, para los mismos.

5 En la solicitud de patente nº. 289.370 se ha des-
crito y reivindicado un método de copiar documentos del
género que presenta áreas de relativamente gran absor-
ción de radiaciones infrarrojas, y áreas donde no hay,
o hay relativamente poca, absorción de radiaciones in-
10 frarrojas, método según el cual el documento es sometido
a radiaciones infrarrojas estando en contacto con



una capa termosensible, la cual comprende una composición que contiene una sustancia polimérica sensible al calor, de un punto de glutinosidad (temperatura a la cual se pone pegajosa) comprendido entre 50°C y 200°C y una temperatura de transición vítrea inferior a su punto de glutinosidad y una viscosidad en fusión, al punto de glutinosidad, comprendida entre 50 y 100.000 poises, hasta que las áreas de la capa en contacto con las áreas del documento que tienen una absorción de radiaciones infrarrojas relativamente elevada se han puesto glutinosas, y luego se separa la capa del documento y se prensa sobre una hoja receptora, para trasladar a ésta por lo menos un estrato de las áreas glutinosas de la capa.

También se describe y reivindica en dicha solicitud un elemento termosensible que comprende un soporte sobre el cual va aplicada una capa de una composición sensible al calor que contiene un componente polimérico cristalino termosensible, teniendo dicha composición un punto de glutinosidad comprendido en el intervalo de temperaturas de 50°C a 200°C, una temperatura de transición vítrea inferior a su punto de glutinosidad, y una viscosidad en fusión, al punto de glutinosidad, comprendida entre 50 poises y 100.000 poises.

Como en dicha solicitud de patente se describe, el punto de glutinosidad de la capa viene definido como la temperatura a la cual la capa se pone glutinosa o pegajosa, cuando se eleva su temperatura. Por "glutinosa" se quiere dar a entender que la capa, o un estrato de ella, puede pasarse por transferencia a una hoja receptora. En este concepto entran muchas sustancias polimé-

302856



ricas termosensibles, adecuadas para su empleo en la invención correspondiente a dicha solicitud.

Como se explica en la citada patente nº. 289.370, las áreas de imagen de la capa conservan su "glutinosis" durante un tiempo que puede variar desde unos pocos segundos a varias horas o más, y luego se recristalizan. Se prefiere que este tiempo de recristalización sea por lo menos de 5 a 10 minutos, de modo que con una exposición pueda prepararse cierto número de copias del documento original. No obstante, puede recurrirse al empleo de una capa de gran velocidad de recristalización, en una máquina sencilla de copias para oficina en la que tengan lugar ambas etapas, de exposición y traspaso o transferencia.

Es preferible "recocer" la capa termosensible antes de su empleo, y también recubrir la capa con una capa porosa que regule la transferencia de la imagen en polímero "glutinoso" al soporte receptor.

Se ha descubierto ahora, conforme a esta invención, que los materiales y el procedimiento de la invención anterior pueden adaptarse a la preparación sucesiva de un número de copias diferentes empleando el mismo material termosensible. Para abreviar el tiempo invertido en hacer el número de copias diferentes, es conveniente emplear sustancias polímeras termosensibles que tengan un tiempo de recristalización breve.

Conforme al presente invento, pues, se habilita un método de copiar documentos por el método descrito y reivindicado en la patente nº. 289.370, caracterizado aquél por el hecho de que, después de copiado un docu-



mento por el mencionado método, la capa de la sustancia polimérica termosensible se deja recristalizar hasta que la temperatura de glutinosidad de la sustancia es superior a la temperatura de transferencia, y luego se repiten las operaciones o etapas de exposición, separación y transferencia hasta obtener una segunda copia, empleando la misma capa termosensible, con el mismo u otro documento.

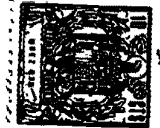
De preferencia, el tiempo invertido en recristalizar la capa "glutinosa" a la temperatura ambiente ordinaria está comprendido entre 2 segundos y 1 hora, y más preferiblemente entre 30 segundos y 10 minutos. Así, el material termosensible tiene la propiedad, después de la transición a su estado amorfo ("glutinoso"), de recristalizar a las temperaturas del ambiente ordinario (de 15° a 35°C) hasta tomar un estado en que posee una temperatura o punto de glutinosidad sensiblemente superior a una determinada temperatura, elegida convenientemente, a la cual se va a efectuar la transferencia de material termoplástico a una superficie receptora.

La duración de este período de recristalización no es crítica, fuera de la necesidad de que debe ser, por lo menos, lo bastante larga para dejar tiempo a que se haga por lo menos una copia por transferencia. Ahora bien, la matriz no puede volverse a utilizar en otro proceso de exposición y transferencia hasta después de recristalizado a un estado de no transferible el material anteriormente activado, por lo cual es ventajoso que el período de recristalización a la temperatura ambiente sea breve. Para su uso en una máquina automática para copias rápidas, podría preferirse una matriz que tuviera



un período de recristalización a la temperatura ambiente extremadamente breve, del orden de 2 a 10 segundos.

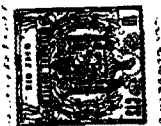
En la puesta en práctica de la invención, una matriz del género indicado se activa solamente en las áreas de imagen elegidas, calentando de modo preferente tan sólo dichas áreas de imagen, por un medio adecuado cualquiera, a una temperatura superior al punto primitivo de glutinosidad del material de la capa termosensible, y luego a una temperatura de transferencia seleccionada sensiblemente inferior al punto primitivo de glutinosidad de dicho material, pero superior al punto de glutinosidad del material activado en las áreas de imagen; y después se prensa o aprieta la capa sensible al calor contra una superficie receptora, con presión suficiente para transferir el material, puesto glutinoso, desde las áreas de imagen de la matriz, y obtener así una imagen reproducida en la superficie receptora. Una vez que el material activado de las áreas de imagen de la capa termosensible ha recristalizado, a la temperatura ambiente, a un estado en que tiene un punto de glutinosidad sensiblemente superior a la temperatura elegida para hacer sucesivas transferencias (de preferencia a una temperatura casi igual al punto primitivo de glutinosidad), la matriz es activada de nuevo, volviendo a calentar selectivamente sólo las áreas de imagen de ella (imagen que puede ser, y usualmente lo será, diferente de la imagen de la primera activación) a una temperatura superior al punto primitivo de glutinosidad, repitiéndose la etapa u operación de transferir, a una temperatura de transferencia dada, superior al punto



de glutinosidad del material nuevamente activado en las áreas de imagen e inferior al punto de glutinosidad del material recristalizado de la capa termosensible. Así es posible hacer con una sola matriz una serie de copias, por transferencia, de distintos documentos. Por lo general, es conveniente operar de modo que la temperatura de transferencia elegida sea la misma para la primera transferencia y para todas las sucesivas, aunque esto no es necesario en modo alguno.

Los elementos termosensibles empleados en la presente invención pueden ser cualesquiera de los descritos en la Memoria de la patente nº. 289.370, pero para obtener los mejores resultados han de tener un tiempo de recristalización comprendido entre 30 segundos y 10 minutos. En algunos casos es preferible emplear capas de polímeros termosensibles que no hayan sido recocidas (esto es, mantenidas a temperaturas relativamente elevadas durante cierto tiempo), y también emplear como polímero el poli (adipato de 1,4-ciclohexanodimetilo) que tiene una viscosidad inherente comprendida entre 0,25 y 0,6 y que puede contener hasta un 8% del itaconato correspondiente.

Otros de los polímeros y copolímeros que pueden emplearse se hallan incluidos entre una amplia diversidad de polímeros termoplásticos sintéticos, entre ellos el poli(succinato de etileno), poli(fumarato de tetrametileno), poli(fumarato de hexametileno), polibuteno-1 y otras poli(alfa-olefinas). Como ejemplo concreto de copolímero que, según se ha visto, posee propiedades adecuadas para su uso en capas termosensibles conforme



al presente invento, es el copoli(fumarato-sebacato de tetrametileno), en relación de 70/30% en peso.

Según se ha descubierto, en algunos casos, los aditamentos tales como plastificantes, tintes y materias sólidas finamente divididas, dispersos en el material termoplástico de la capa termosensible, modifican radicalmente las propiedades de recristalización del material. Por ejemplo, aumentando la concentración del tinte azul-negro B azoico oleoso (Azo Oil Blue Black B) del 3% al 6% en recubrimientos de poli(adipato de 1,4-ciclohexanodimetileno), (V.I.) de 0,47, el período de después de la activación, para la recristalización del material a la temperatura ambiente hasta un estado en que tenía un punto de glutinosidad superior a 70°C, pudo prolongarse desde unos 35 segundos a alrededor de 1½ minutos. En la selección de un plastificante, tinte u otro aditamento cualquiera concreto y particular a incluir en la capa termosensible de una matriz para uso en la presente invención, hay que tener en cuenta su efecto en las propiedades de recristalización, así como su compatibilidad y efecto sobre el punto de glutinosidad.

Los materiales termosensibles para una matriz a utilizar en la presente invención pueden también elegirse de entre los de la clase de materiales termosensibles que comprende un polímero que lleva en dispersión un compuesto cristalino que funde a una temperatura de activación superior a 50°C y se mezcla íntimamente con el polímero formando una mixtura amorfa con un punto de glutinosidad sensiblemente inferior al del material no activado que hay en el revestimiento. Un material de esta



clase, para que sea útil en el procedimiento de esta invención, debe tener además la propiedad de recristalizar a la temperatura ambiente, en un tiempo adecuadamente breve, tomando un estado en que posee una temperatura o punto de glutinosidad superior a la temperatura a utilizar para la operación de transferencia, y preferiblemente muy próxima al punto de glutinosidad primitivo.

Para hacer copias visibles de documentos, el material transferido ha de tener color. El negro es un color favorito para las copias, prefiriéndose utilizar en esta invención un colorante que tanto sea compatible con el material termoplástico como transparente para con las radiaciones infrarrojas. Una mezcla de tinte negro especialmente adecuada al caso consiste en alrededor de cinco partes en peso de azul-negro B oleoso azoico y unas dos partes en peso del colorante amarillo 1,3-difenil-4-(p-metoxifenilazo)-5-pirazolona. En lugar de este último pueden incorporarse a la mezcla otros colorantes amarillos compatibles con el tinte azul-negro, para hacer un tinte negro compatible. Para dar color a la capa termosensible de la matriz pueden elegirse otros muchos materiales colorantes compatibles, de distintos colores.

La concentración de colorante en el revestimiento estará usualmente comprendida entre alrededor de 3 y aproximadamente 20 partes en peso por cada 100 partes del polímero, dependiendo la concentración óptima de la densidad de imagen necesaria, y de la cantidad de polímero a transferir.



La temperatura de transferencia elegida puede ser una cualquiera a la que se ponga glutinoso el material termosensible de las áreas de imagen activadas, de la matriz, pero no el de las áreas de fondo. En otros términos, para la primera transferencia, la temperatura de transferencia debe ser inferior al punto de glutinosidad primitivo de la capa termosensible y superior al punto de glutinosidad reducido del material activado que ha sufrido transición al calentarlo; y para las sucesivas transferencias, la temperatura de transferencia debe ser inferior al punto de glutinosidad del material que ha recristalizado.

En esta Memoria se hace uso del término compuesto "punto de glutinosidad" para definir la mínima temperatura a la cual un material termoplástico, en el estado que se indica, experimenta un cambio del estado no glutinoso ni viscoso, en el cual el material no puede ser transferido por presión, a un estado viscoso y glutinoso en el cual el material se transferirá. Un polímero cristalino puro sufre este cambio de estado a su temperatura de transición de primer orden, y un polímero amorfo puro experimenta el cambio a su temperatura de transición de segundo orden; con todo, se eligió el término "punto de glutinosidad" para referirse a este cambio de estado tanto para polímeros puros como modificados, en los estados amorfo y cristalino, así como para las composiciones poliméricas en estados intermedios de parcialmente cristalizadas, y para las composiciones poliméricas modificadas entre las que se incluyen aquéllas que contienen un componente polimérico



y un componente cristalizado no polimérico que funde a elevada temperatura modificando la condición o estado del componente polimérico.

El procedimiento de la presente invención puede ponerse en práctica utilizando una matriz que tenga un soporte adecuado cualquiera, tal como papel, película fotográfica de soporte, papel metálico, celofana y similares. Cuando en la etapa de activación se emplea la exposición a rayos infrarrojos, el soporte debe ser esencialmente transparente a esta radiación. Se prefiere para ello un soporte de papel flexible.

Como se apreciará, dadas las diversas variables que intervienen, y con dependencia de las propiedades particulares del material termosensible elegido para la matriz a utilizar, tales como el punto de glutinosidad primitivo, el punto de glutinosidad reducido y la velocidad de recristalización, pueden variar considerablemente las condiciones de trabajo tales como el calentamiento preferente, la temperatura de transferencia y la presión.

La invención se ilustra mediante los siguientes ejemplos:

Ejemplo 1

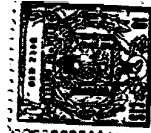
Se prepara un elemento termosensible, adecuado para su uso en el procedimiento de la invención, del modo siguiente: Sobre una hoja de papel transparente de dibujo, o para superponibles (papel tela Rhineland) se aplica como revestimiento una solución al 30%, en dicloruro de etileno, de una mezcla de 95:5 de poli(adipato de 1,4-ciclohexanodimetileno) y tinte azul-negro B oleoso



azoico. El homopolímero tiene una viscosidad inherente de 0,47, medida en mezcla a 1:1 de fenol y clorobenceno.

Después de dejarlo secar toda la noche a 72°C, el revestimiento termoplástico seco tiene aproximadamente 2,5 micras de espesor y ha cristalizado tomando un estado no glutinoso ni viscoso, que tiene un punto de glutinosidad primitivo de alrededor de 110°C. A esta temperatura primitiva u originaria de glutinosidad, el revestimiento polimérico sufrirá la transición a un estado amorfo, en el cual se pondrá glutinoso a temperaturas tan reducidas, por lo menos, como la del ambiente. Ahora bien, al enfriarse el material amorfo a temperaturas inferiores al punto de glutinosidad primitivo, comienza a recristalizar y, a medida que tiene lugar la recristalización, el punto de glutinosidad va creciendo. Al cabo de unos 5 minutos de haberse enfriado a la temperatura ambiente el material activado, su punto de glutinosidad ha subido a un nivel superior al de la temperatura ambiente (20-25°C), que es la temperatura elegida en este caso para hacer las copias por transferencia.

Después de dejada secar durante toda la noche, la matriz revestida se pone en contacto con un documento que tiene áreas de imagen, absorbentes de radiaciones infrarrojas, y áreas de fondo relativamente no absorbentes. El revestimiento termosensible de la matriz se coloca contra el anverso del documento, y el conjunto es expuesto a radiación infrarroja, introduciéndolo y haciéndolo pasar por una máquina de hacer copias termográficas. En las áreas de imagen del documento, se genera calor por absorción



de radiaciones infrarrojas, y este calor es transmitido a las áreas de imagen adyacentes de la matriz, haciendo subir la temperatura de estas áreas por encima del punto primitivo de glutinosidad de la capa polimérica. La matriz es separada del documento y puesta inmediatamente en contacto con una hoja de papel receptora, del tipo común en oficinas, con la superficie revestida de la matriz puesta contra la hoja receptora. Este conjunto compuesto se introduce por entre dos rodillos de acero cargados de modo que ejercen, a lo largo de la línea de contacto, una fuerza de 9 kg por centímetro lineal, y el polímero activado es transferido desde las áreas de imagen de la matriz a la hoja receptora, a la temperatura ambiente. Separando la matriz y la hoja receptora, se observa que en ésta ha quedado una reproducción impresa del documento original.

Al cabo de unos 5 minutos, durante los cuales la matriz utilizada se mantiene a la temperatura ambiente, la matriz puede hacerse pasar de nuevo a través de los rodillos de transferencia, a la temperatura ambiente, en contacto con otra hoja receptora para demostrar que no hay transferencia alguna del polímero. Esto, naturalmente, no forma parte del procedimiento de copia, pero demuestra que el polímero activado ha recristalizado tomando un estado en el que posee un punto de glutinosidad superior a la temperatura de transferencia que se ha elegido. Después de esto, utilizando un segundo documento impreso pero empleando la misma matriz, se efectúa una segunda exposición a rayos infrarrojos, como antes, seguida de otra transferencia del



mismo modo anterior, a través de los mismos rodillos de transferencia. En la hoja receptora se observa que ha quedado una clara reproducción impresa del segundo documento.

5 Volviendo a utilizar la misma matriz con un tercer documento, después de haber dejado de nuevo un intervalo de 5 minutos para que el polímero activado recristalice a la temperatura ambiente, se hace una tercera exposición como antes, seguida inmediatamente de transferencia de igual modo, obteniéndose una reproducción impresa del tercer documento.

15 Estas etapas u operaciones de activación y transferencia después de la recristalización a la temperatura ambiente pueden repetirse, utilizando una sola matriz con distintos documentos, hasta que desde la matriz ha sido transferida tanta cantidad de polímero activado que, en el revestimiento polimérico de la matriz, empiezan a aparecer áreas desprovistas o "calvas". El número de transferencias de buena calidad obtenibles de una sola matriz puede acrecentarse aumentando el espesor del revestimiento polimérico, y también incorporando a la matriz algún medio para regular la velocidad de transferencia del material termoplástico. Por ejemplo, pueden emplearse a tal propósito diminutos gránulos de vidrio u otras partículas sólidas en dispersión en la capa termoplástica, o bien una capa porosa y permeable aplicada como recubrimiento sobre la capa termoplástica, y en algunos casos se puedercurrir a los dos medios. En la solicitud de patente nº. 289.370 se estudian con mayor detalle diferentes medios para regular la transferencia

del material activado.



Ejemplo 2

5 Se prepara una solución de 30 partes en peso de poli(adipato de 1,4-ciclohexanodimetileno) de una viscosidad inherente de 0,42 con una parte en peso de tinte azul-negro B oleoso azoico de la National Aniline y 0,5 partes en peso de 1,3-difenil-4-(p-metoxifenilazo) -5-pirazolona, en cloruro de metileno suficiente para hacer 100 partes.

10 Después de uniformemente disueltos en el disolvente los colorantes y la resina, se añaden con agitación continua 1,8 partes de gránulos de vidrio de un tamaño medio de 10 a 30 micras.

15 Este material se aplica por recubrimiento sobre papel Rhinelanders resistente a las grasas, hasta tener un peso en seco de 16 g/m^2 , y el revestimiento se mantiene a 50°C durante 5 minutos, en una cámara caliente y ventilada, para evaporar el disolvente y permitir la cristalización del revestimiento polimérico. A continuación se aplica un recubrimiento poroso sobre el anterior, con una cobertura en seco de $4,3 \text{ g/m}^2$, de la composición siguiente: 47,7 g de poli(alcohol de vinilo) (Elvanol 50-42 de DuPont) en solución acuosa al 6,5%, 33 ml de solución acuosa al 1,5% de Aerosol OT como agente expendedor, 60 ml de Ludox AM, que es una suspensión al 30% de sílice coloidal en agua, 25 gramos de sulfato sódico y 71 ml de agua. Este recubrimiento se seca formando una película porosa por evaporación a la temperatura ambiente. La matriz así recubierta se usa
25
30 entonces para hacer copias por transferencia de varios



12

documentos a base de una sola matriz, como se describe
 en el ejemplo 1, pero eligiendo para ello una tempera-
 tura de transferencia de 70°C. Los rodillos de transfe-
 rencia se calientan a 70°C, para calentar la matriz a la
 5 temperatura de transferencia elegida al pasar por entre
 ellos la matriz con la hoja receptora.

Si así conviene, se puede hacer más de una transferen-
 cia, después de cualquier activación simple, si en el
 período anterior a la subida del punto de glutinosidad
 10 del material activado, hasta sobrepasar la temperatura
 de transferencia, hay tiempo suficiente para efectuar
 nuevas transferencias.

Esta solicitud que corresponde a la presentada en
 E.U.A., el día 7 de Agosto de 1.963, bajo el número
 15 300641 (parcial), se acoge a los beneficios del artículo
 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

- N O T A -

20

Los puntos de invención propia y nueva que se pre-
 sentan para que sean objeto de esta solicitud de Certi-
 ficado de Adición en España, son los siguientes:

- 1.- Mejoras introducidas en el objeto de la Patente
 25 Principal núm. 289.370, o sea en el método de copiar
 un documento, específicamente en el punto 1 de dicha
 patente, caracterizadas porque en dicho método, después
 de que un documento ha sido copiado por el método antes
 mencionado, la capa de sustancia polímero sensible al
 30 calor es dejada recristalizar hasta que la temperatura de

302856



pegajosidad de la sustancia es superior a la temperatura de transferencia, repitiendo luego las operaciones de exposición, separación y transferencia del método antes mencionado para obtener una segunda copia sobre la misma capa sensible al calor empleando el mismo u otro documento.

2.- Mejoras de acuerdo con el punto 1 caracterizadas porque, en dicho método el tiempo requerido para la recristalización de la capa sensible al calor es de entre 2 segundos y 1 hora.

3.- Mejoras de acuerdo con el punto 2 caracterizadas por que en dicho método, el tiempo antes mencionado es de entre 30 segundos y 10 minutos.

4.- Mejoras de acuerdo con cualquiera de los puntos precedentes caracterizadas porque, en dicho método, la sustancia polímera sensible al calor es una cualquiera de las mencionadas en la patente núm. 289.370.

5.- Mejoras de acuerdo con cualquiera de los puntos 1 a 3 caracterizadas porque, en dicho método la sustancia polímera sensible al calor es poli(adipato de 1,4-ciclohexanodimetilo) que tiene una viscosidad inherente entre 0,25 y 0,6.

6.- Mejoras de acuerdo con cualquiera de los puntos precedentes caracterizadas porque, en dicho método la capa sensible al calor contiene un compuesto cristalino que funde por encima de 50°C.

7.- Mejoras de acuerdo con cualquiera de los puntos precedentes caracterizadas por que, en dicho método, la capa sensible al calor está revestida con una capa porosa, no pegajosa, seca, para regular la transfe-



rencia de material viscoso desde la capa sensible al calor expuesta.

8.- Mejoras introducidas en la fabricación de elementos sensibles al calor caracterizadas por que dichos elementos comprenden un soporte que lleva una capa de una sustancia polímera sensible al calor que tiene un punto de pegajosidad entre 50°C y 200°C y una viscosidad en fusión entre 50 y 100.000 poises y que tiene también la propiedad de recristalizar desde el estado amorfo alcanzado después de ser calentada a su punto de pegajosidad hasta su estado original, a una temperatura entre 15° y 35°C, en un tiempo entre 2 segundos y 10 minutos.

9.- Mejoras de acuerdo con el punto 8 caracterizadas por que, en dichos elementos, el tiempo de recristalización es de 30 segundos a 10 minutos.

10.- Mejoras de acuerdo con cualquiera de los puntos 8 a 9 caracterizadas porque, en dichos elementos, la sustancia polímera sensible al calor es una cualquiera de las mencionadas en la patente nº 289.370.

11.- Mejoras de acuerdo con cualquiera de los puntos 8 ó 9 caracterizadas por que, en dichos elementos, la sustancia polímera sensible al calor es poli(adipato de 1,4-ciclohexanodimetilo) que tiene una viscosidad inherente entre 0,25 y 0,6.

12.- Mejoras de acuerdo con cualquiera de los puntos 8 a 11 caracterizadas porque, en dichos elementos, la capa sensible al calor contiene un compuesto cristalino que funde por encima de 50°C.

13.- Mejoras de acuerdo con cualquiera de los

302856



puntos 8 a 12 caracterizadas porque, en dichos elementos, la capa sensible al calor está revestida con una capa porosa, no pegajosa, seca, para regular la transferencia de material viscoso desde la capa sensible al calor expuesta.

5

14.- Mejoras de acuerdo con cualquiera de los puntos 8 a 13 caracterizadas porque, en dichos elementos, la capa sensible al calor contiene materia colorante.

15.- Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 289.370.

10

Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede, y con los fines que se han especificado.

Esta Memoria consta de diez y ocho hojas escritas a máquina por una sola cara.

15

Madrid, 12 SEP. 1964

P.A.

Alberto de Ezabunaga
 Alberto de Ezabunaga
 En Poder

302856

A.F.A.

CFM