

358007

P-39524



P 16.71 484.4

Memoria descriptiva

para solicitar PATENTE DE INVENCION por 20 años

a nombre de DR. KARL ZIEGLER

~~ciudad~~ / de nacionalidad alemana

con domicilio en Kaiser-Wilhelm-Platz 1, Mulheim/Ruhr, República Federal Alemana.

por: "UN DISPOSITIVO DE CELDA O CUBA DE ELECTROLISIS"

(Clase Internacional Bolk)



En Chemie-Ingenieur-Technik, 35,(1963) se describe una celda o cuba electrolítica en la que se pueden preparar alcohilos metálicos, especialmente tetraetilplomo, por electrólisis de ánodos metálicos, preferiblemente ánodos de plomo en un electrolito órgano-metálico complejo frente a cátodos de disco rotatorios y humectados con mercurio. Esta celda, que es una celda de ensayo de pequeño tamaño, fué hecha funcionar con 200 amperios como máximo, que se repartían por 3 ánodos y en 4 cátodos de disco rotatorios. Los ánodos de plomo tenían un espesor de 4mm, la distancia libre entre los cátodos de disco rotatorios era de 9mm, de manera que al comienzo de la electrólisis el espacio libre para el electrolito entre los electrodos era de 2,5 mm, y a continuación hasta inmediatamente antes de la disolución de los ánodos aumentaba hasta 4,5mm. Los ánodos tenían una forma correspondiente a la parte activa de los cátodos circulares rotatorios.

Si se hace funcionar esta celda con una tensión constante, por ejemplo de 4,5 voltios, con una densidad de corriente inicial de 36 amperios/dm², y la intensidad de corriente que sale de los cátodos individuales disminuye desde 67 A al comienzo hasta 37A poco antes de la total disolución. Si se quisiera hacer funcionar la celda con intensidad de corriente constante, se debería elevar correspondientemente la tensión. En la celda conocida se logró mediante un pequeño artificio que, con una tensión aproximadamente constante, el consumo medio de corriente de todas las celdas también permaneciese aproximadamente constante, a saber introduciendo en primer lugar solo un ánodo metálico e introduciendo los dos siguientes a inter-



valos de tiempo de una hora, Como los ánodos se disolvían completamente en aproximadamente 3 horas, había siempre en la celda, comenzando tres horas después de la iniciación del funcionamiento, un ánodo introducido de manera relativamente reciente que consumía una alta intensidad de corriente, un ánodo introducido aproximadamente hasta la mitad con reducida intensidad de corriente, y un ánodo casi totalmente introducido con una intensidad de corriente dentro del orden de magnitud del valor límite inferior de los anteriormente citados. Por repetido recambio de los ánodos se puede hacer funcionar a la celda con un consumo de corriente medio de 1000 watios a aproximadamente 5 voltios, es decir bajo condiciones perfectamente constantes.

Se puede observar, que con construcciones similares con un número elevado de electrodos se puede lograr de acuerdo con el mismo principio un consumo de corriente completamente constante de las celdas con cualquier aproximación, pudiéndose reunir en el esquema descrito también grupos de ánodos en lugar de los ánodos individuales. A pesar de ello, esta celda posee también desventajas, en primer lugar la desventaja de que es necesario un dispositivo no muy sencillo para extraer con estanqueidad los ánodos consumidos y para introducir con estanqueidad los nuevos ánodos, Esto ha de ser atribuídos a que el electrolito organometálico complejo es sensible a la luz grado máximo, e incluso es auto-inflamable, de manera que hay que guardarse mucho de dejar penetrar aire en el aparato durante el recambio de los electrodos.

La construcción de celda tiene además otra nueva desventaja. Para fines técnicos se debe agrandar evidentemente la celda en gran manera, y se debe construir para el



consumo de por ejemplo 10.000 a 100.000 amperios. Ya una celda a escala semitécnica para un consumo de aproximadamente 1000 amperios muestra claros defectos. Estos han de ser atribuidos a que con la conductividad relativamente pequeña del electrolito órgano metálico es forzosamente necesarios que durante la disolución de los ánodos metálicos no varíe demasiado la separación entre electrodos, es decir, se está obligado a utilizar ánodos con solo unos pocos mm. de espesor. En efecto, se podrían producir los ánodos con cualquier espesor y disponer los cátodos de disco rotatorios a distancias correspondientes, pero entonces la celda en el transcurso de su funcionamiento trabajaría siempre de manera antieconómica. Por ejemplo, si se utilizasen ánodos de 20 mm de espesor y se comenzase la electrólisis con una separación entre electrodos de 2 mm. por ambos lados, la separación entre electrodos aumentaría durante la disolución de los ánodos a un valor 6 veces mayor. Esto conduciría a una elevación intolerable de la resistencia y a la disminución del consumo de corriente y de la densidad de corriente, y por lo tanto comprometería la rentabilidad del funcionamiento de la celda.

Al presente invento correspondió la finalidad de orillar estas desventajas conocidas y hacer posible una electrólisis universal y sobre todo rentable en la celda citada. En primer lugar se intentó utilizar, en lugar de discos catódicos rotatorios simples, discos dobles, que al comienzo de la electrólisis están muy cerca unos de otros y actúan como un único disco, pero que durante la electrólisis se separan entre sí y pueden ser reajustados a la posición de los ánodos metálicos que se disuelven lenta-



mente, con lo cual la distancia entre ánodo y cátodo permanece prácticamente constante. Tal disposición tiene, en efecto, la ventaja de que se necesita recambiar los ánodos solo a intervalos de tiempo mayores, con un espesor de 30mm, por ejemplo solo cada 24 horas; sin embargo, su desventaja es la complicada construcción del rotor, que debe hacer posible el ajuste de la distancia de los pares de discos en funcionamiento, es decir, durante la rotación. Otras desventajas consisten en que durante la mayor parte de la electrolisis los discos catódicos individuales actúan solo por un lado y que en el mismo volumen de que se dispone se puede acomodar solo un número esencialmente mas pequeño de ánodos gruesos con superficie correspondientemente mas pequeña que con ánodos delgados de solamente unos pocos mm. de grueso, con cuya utilización las dimensiones globales para un determinado consumo de corriente pueden ser escogidos muchos mas pequeñas. Por lo demás, en el funcionamiento práctico de tal celda de ensayo con pares de discos ajustables en calidad de cátodos se ha demostrado que el problema en la extracción e introducción con estanqueidad de los ánodos bastante gruesos y pesados no puede ser resuelto de manera demasiado fácil con completa exclusión del aire.

La solución del problema del invento es una celda de electrolisis que se basa esencialmente en la utilización de ánodos metálicos relativamente más delgados, pero que evita todas las desventajas de las construcciones empleadas hasta ahora.

La nueva celda de electrolisis, especialmente

27.10.68



una celda con al menos 2 cátodos dispuestos verticalmente en el electrolito, especialmente cátodos en forma de discos circulares, está caracterizado por ánodos metálicos de cualquier longitud, en forma de banda, introducidos con estanqueidad bajo exclusión de aire en el electrolito, a medida de su disolución durante la electrólisis, de forma continua, y preferiblemente con avance intermitente.

De acuerdo con el invento, el material anódico es repuesto con antelación fuera de la celda de electrólisis por unión directa del nuevo ánodo consumido. Por ello, incluso con una electrólisis de duración muy grande, no es necesario para suministrar subsiguientemente el ánodo abrir la celda por medio de una compuerta estanca, de manera que están excluidas penetraciones de aire a causa de difusión o de funcionamiento incompleto de la compuerta estanca. El invento es explicado a continuación con ayuda de algunos dibujos, que muestran, a título de ejemplo, formas de realización de las celdas de acuerdo con el invento:

La figura 1 muestra esquemáticamente un ánodo en forma de banda 1 que penetra en el espacio entre por ejemplo dos cátodos de disco. Por razones de simplicidad se representa solo un cátodo de disco 2, que está montado sobre el árbol rotatorio 3.

Los cátodos, en el ejemplo representado, son discos circulares rotatorios humectados con mercurio, pero el principio de acuerdo con el invento, de la introducción con estanqueidad de ánodos en celdas de electrólisis se puede aplicar también para disposiciones de cátodos fundamentalmente de otro tipo, tal como se mostrará también más tarde. Sin embargo en una celda con cátodos de disco circulares rotatorios el principio de acuerdo con el in-



vento puede ser explicado de la manera más sencilla.

El ánodo 1 es una banda metálica de cualquier -
longitud y con algunos mm de espesor, por ejemplo aproxi-
madamente 2 a 6 mm, mientras que la anchura de la banda
5 es convenientemente algo más pequeña que el diámetro de los
cátodos de disco rotatorios. Si una tal banda, cortada al
comienzo de forma horizontal, es introducida desde arriba
entre un par de cátodos de disco rotatorios, tal como se
representa en la figura 1, Fase I, en el transcurso de la
10 electrólisis, correspondientemente al rayado de la figura
1, fase I, se disuelve un trozo del ánodo de acuerdo con
la fase II de la figura 1. Si a continuación el ánodo en
forma de banda es desplazado ulteriormente hasta la posi-
ción de la fase III de la figura 1, elimina por electrólisis
15 desde el ánodo cada vez un trozo aproximadamente en
forma de media luna rayado en la figura 1, fase III, el
cual, finalmente es totalmente disuelto en el correspon-
diente desplazamiento ulterior.

En el desplazamiento ulterior hay que tener
20 cuidado solo de que las puntas de la banda de ánodo corta-
da en forma de media luna no penetren jamás en el mercurio
dentro del que se mueven los discos catódicos. Esto
conduciría a un inmediato cortocircuito y además, con áno-
dos de plomo, a la inmediata disolución del plomo en el
25 mercurio. Por lo tanto, de manera conveniente, se mantiene
entre los lugares más profundos de la banda de plomo y la
superficie de mercurio una distancia de seguridad de aproxi-
madamente 0,5 a 1 cm.

Se puede calcular con facilidad o comprobar por
30 planimetría que la parte del ánodo de banda individual



en forma de media luna que se disuelve en una etapa de trabajo, es aproximadamente 35% de la superficie circular de los discos catódicos individuales. Como, sin embargo, el ánodo es atacado por ambos lados y también los discos catódicos actúan por ambos lados, la superficie aprovechada realmente activa de los diversos discos catódicos asciende a aproximadamente 70% de la superficie circular.

Para el modo de trabajo seguro de la celda de electrólisis de acuerdo con el invento se deben adaptar los ánodos de banda a las siguientes exigencias:

1) La banda debe ser fijada con seguridad y exactitud entre los cátodos rotatorios;

2) La banda debe estar en contacto en un lugar apropiado, en lo posible sin gran resistencia pasiva, con un manantial de corriente;

3) La banda fijada debe poder ser separada con facilidad y en corto tiempo tanto de la posición como del contacto con el manantial de corriente, para que pueda ser desplazada ulteriormente en un trozo apropiado;

4) La banda debe ser fijada de nuevo con facilidad después del desplazamiento y debe ser puesta en contacto de nuevo en el tiempo más corto posible con el manantial de corriente. En efecto, se podría pensar en lo que se refiere al desplazamiento, fundamentalmente también en un movimiento sencillo primitivo por ejemplo a mano en la magnitud correcta, pero es deseable que:

5) los ánodos sean transportados automáticamente en la longitud correcta sin que existe el peligro de que caigan dentro del mercurio.

Esta última condición se puede satisfacer con fa-



5 cilidad dividiendo la cuba de mercurio en cámaras, cuyas paredes intermedias sobresalen una distancia suficiente desde el mercurio y sirven como soporte para los ánodos tal como se representa a título de ejemplo en la figura 2.

Aquí, el cátodo de disco 2 fijado sobre el árbol rotatorio 3 penetra en la cuba de Hg 4 provista con un reborde de rebose 5, cuya pared intermedia perforada 6 actúa como soporte para el ánodo de banda.

10 Las condiciones establecidas para el ánodo de banda se pueden obtener a título de ejemplo de la siguiente manera, explicada en las figuras 3 y 4: el ánodo de banda individual 1 está en contacto con una chapa de cobre 7 en calidad de manantial de corriente, convenientemente a distancia suficiente de la superficie del electrolito. También pueden estar dispuestas chapas de cobre por
15 ambos lados de los ánodos. Por ambos lados de las piezas conductoras de corriente, ánodos y chapas de cobre, están dispuestos cuerpos hinchables 8 a base de material elástico, por ejemplo en forma de lentes o de rectángulos. Para estos denominados cuerpos hinchables se pueden utilizar fuelles metálicos elásticos o también construcciones apropiadas a base de caucho. Existen tipos especiales
20 de caucho que son resistentes contra el ataque del electrolito eventualmente salpicado hacia arriba o de los alcoholos de aluminio evaporados desde éste. También se pueden utilizar cuerpos hinchables a base de caucho vulcanizado o de cualquier caucho sintético, sobre los cuales están colocadas, para su protección, delgadas láminas
25 a base de politetrafluoroetileno, polipropileno, poli-4-
30



metilpenteno-(1) o polímeros químicamente muy resistentes.
similares. Todo el dispositivo se encuentra en una cuba
de longitud apropiada por encima de la cámara electrolítica
propriadamente dicha de manera que a lo sumo adopta una tempe-
5 ratura ligeramente elevada, pero en ningún caso la tempera-
tura total que reina en el electrolito propriadamente dicho.

Evidentemente, en una cuba de sección transver-
sal apropiada puede estar dispuesto un número mayor de estas
10 piezas individuales unas junto a otras es decir alternadas,
comenzando en apoyo de la cuba, cuerpo hinchable-chapa de
cobre-banda de plomo-(chapa de cobre)- cuerpo hinchable-
chapa de cobre-etc. Desde los cuerpos hinchables, unos tubi-
tos llevan a una conducción común, mediante la cual los -
15 cuerpos hinchables pueden ser inflados mediante agentes apro-
piados, tales como por ejemplo un gas o un aceite a pre-
sión. Las chapas de cobre, que sobresalen lateralmente en
una distancia suficiente, están unidas con el manantial de
corriente. Es comprensible sin dificultades la manera en que
20 debe ser hecha funcionar tal disposición con el fin de
cumplir las funciones citadas para el ánodo de banda más
arriba en los apartados 1) a 5). Con los cuerpos hinchables
deshinchados las bandas anódicas son introducidas primeramente
hasta el punto más profundo posible, entonces se aporta su-
25 ficiente presión a los cuerpos hinchables y se fija de esta
manera el sistema que consiste en ánodos y manantial de co-
rriente. Cuando después de una cierta duración de la electro-
lisis, el extremo inferior del ánodo se ha disuelto, la pre-
sión dentro los cuerpos hinchables es suprimida o reducida
30 durante corto, tiempo. Entonces se puede lograr con facili-
dad que los ánodos de banda, a causa de su propio peso, pero



5 todavía algo frenados por el frotamiento, resbalen ulteriormente por sí mismos hasta el soporte descrito de la celda. Subsiguientemente, se fija de nuevo la banda anódica por elevación de la presión en los cuerpos hinchables.

10 En la práctica era suficiente por ejemplo con una banda metálica de 20 cm. de anchura y con un diámetro de una lente de caucho de 16 cm, una presión de 0,05 atmósfera para mantener fijo todo el sistema de placas. La presión de apriete o de compresión ha resultado en este caso aproximadamente de 10 kg. Con una intensidad de corriente de los ánodos individuales de 60 amperios se midió, bajo esta carga, la diferencia de tensión entre la banda de plomo y la chapa de cobre conductora de corriente. La pérdida de tensión con una presión de 0,05 atmósferas que reinaba en los cuerpos hinchables, fué de 30 milivoltios, y con una presión de 0,1 atmósfera fué de 20 milivoltios; cuando se elevaba la presión ya no variaba más el valor. Estos son valores extraordinariamente favorables, dado que con una tensión global de las celdas de aproximadamente 4 a 5 voltios estas pequeñas pérdidas de tensión debidas a las resistencias de paso carecen totalmente de importancia.

25 De por sí, sería incluso posible, montar este dispositivo que mejora la celda de electrólisis en la cuba por encima de la celda propiamente dicha, sin dificultad con una holgura tan pequeño que después de hinchar los cuerpos hinchables también se verifique hacia arriba una completa exclusión del aire, Sin embargo, no es necesario 30 satisfacer esta exigencia con extrema precisión, ya que la

27.10.68



12
exclusión del aire puede realizarse de otra manera más sencilla y mas segura. En efecto, de acuerdo con el invento, los ánodos de banda osn introducidos en el extremo superior de la cuba a través de un material elástico de cierre hermético apropiado, que impide toda entrada de
5 aire. Se puede disponer este sistema de cierre hermético también multiples veces, por ejemplo dos veces uno sobre otro, con algunos centímetros de separación, y se puede poner al espacio intermedio entre las placas protectoras
10 bajo ligera presión de nitrogeno.

Los ánodos de banda que se han de utilizar de acuerdo con el invento pueden ser de cualquier longitud, pero en la práctica tienen siempre una longitud limitada. En estos casos hay que resolver el problema de la oportuna
15 conexión de un nuevo ánodo con el ánodo consumido, pero esto no plantea ninguna dificultad. Hay que tener cuidado solamente de que la conexión tenga lugar, mientras que la parte superior del ánodo de banda que se disuelve en el electrolito sobresalga todavía suficientemente fuera de
20 la celda, y entonces se puede conectar el siguiente ánodo por ejemplo por soldadura.

Un suministro ulterior de ánodos especialmente sencillo sería posible mediante un dispositivo de colada continua dispuesto por encima de la celda. Además, evitando
25 procedimiento de soldadura o de fusión, el ánodo de reemplazo podría ser unido el ánodo ampliamente consumido a manera de la unión de la cola de milano utilizada en multiples casos en el trabajo de la madera. Ambas, tal como se pueden observar en la figura 5 solo deben estar en el
30 punto de unión rígidas una junto a otro y en caso necesario



5 deben ser apretadas o comprimidas con pequeña presión. Esta unión es totalmente suficiente, sin que al introducir a presión tal unión en el transcurso de la ulterior electrolisis en la zona de disolución, se desprendan los últimos restos del antiguo ánodo y caigan dentro del mercurio - (Veáse figura 5).

10 El invento ha sido descrito con el ejemplo especialmente importante de la disolución de ánodos de plomo para formar, por ejemplo, un compuesto de tetraalcoholplomo. Evidentemente, puede ser aplicado sin dificultades también con otros metales, especialmente, se consideran en calidad de otros materiales de ánodo estaño, antimonio, y bismuto y aluminio. El método de la reposición de los ánodos consumidos descrito en último lugar entre las diferentes posibilidades debe desempeñar un papel especial sobre todo
15 con el aluminio, ya que con este metal, por ejemplo la soldadura plantea mayores dificultades que con el plomo.

20 Evidentemente es también posible emplear los ánodos que se han de introducir en la celda de electrolisis en forma de bandas muy largas enrolladas sobre rodillos las cuales son desplazadas acto seguido con un dispositivo apropiado, a intervalos, dentro del electrolito. Esto se puede lograr por ejemplo utilizando bandas enrolladas sobre rodillos, disponiendo el sistema de sobre rodillos, tal como se representa en la figura 6, oblicuamente unos sobre
25 otros. Esta disposición tiene no obstante la desventaja de que los ánodos no pueden resbalar ulteriormente por su propio peso en la longitud correcta.

30 Además de para celdas electrolíticas el procedimiento según el invento de la introducción con estanqueidad



de bandas metálicas en un reactor bajo la exclusión de aire puede utilizarse naturalmente también para otros fines, por ejemplo en la fabricación de aluminio de alta pureza en el cual frente a los ánodos de aluminio introducidos en la celda de acuerdo con el invento se coloca un sistema de cátodos, y con baja densidad de corriente se precipita sobre cátodos de aluminio delgados dispuestos fijamente un aluminio macizo de alta pureza, o con una alta densidad de corriente se precipita aluminio en forma de un polvo - cristalino, el cual, a continuación, es retirado de la celda en circuito cerrado por ejemplo con ayuda de bombas para suspensiones.

El invento es especialmente apropiado para la preparación de alcoholos metálicos por electrolisis de compuesto órganometálicos, es pecialmente aluminio-órganicos, tal como se describen, por ejemplo en la Patente alemana 1.161.562. Allí está descrita la preparación de compuestos alcoholos sobre todo del plomo, pero también de otros metales sólidos, tales como magnesio, aluminio, estaño, antimonio o bismuto, De acuerdo con este procedimiento, un electrolito que contiene un compuesto de la fórmula general $Me(AlR R')$ en que R significa un radical alcoholo, R' significa un radical alcoholo, alcóxi y ariloxi eventualmente sustituido o fluor, y Me significa sodio, potasio o mezclas de sodio y potasio, es electrolizado con ánodos a base de los metales citados y con un cátodo de mercurio. En este caso, el procedimiento es especialmente apropiado para la preparación de compuestos organo-metálicos con radicales alcoholo de hasta 6 átomos de carbono, siendo especialmente importante para la aplicación técnica la preparación de com-



puestos de tetraalcohol-plomo. Los tetraalcohol-plomos inferiores empleados en la práctica en gran extensión, especialmente el tetrametil-plomo y el tetrametil-plomo, según pueden prepararse ventajosamente de acuerdo con el invento utilizando las reglas elaboradas con anterioridad.

5

Para las propiedades químicas generales de este procedimiento de preparación se pueden hacer referencia especialmente a la patente alemana 1.166.196, en la que se describe por ejemplo la preparación de tetraetil-plomo por electrolisis de compuestos complejos aluminio-orgánicos, así como la Memoria de la Patente alemana 1.220.855, que describe la correspondiente preparación de tetrametil-plomo. Otros datos importantes para la preparación electrolítica de alcoholes metálicos, y por lo tanto para el campo de aplicación del invento aquí descrito están contenidos en las memorias de Patentes alemanas 1.150.078 y 1.157.622. La primera de estas dos publicaciones concierne a la preparación de trialcohol-aluminio y de dialcoholes de magnesio utilizando compuestos complejos aluminio-orgánicos en calidad de electrolitos, mientras que en la segunda publicación se describe una importante variante para la preparación de tetrametil plomo por vía de la electrolisis especialmente de compuestos complejos aluminio-orgánicos. La utilización de estos principios de procedimiento anteriormente descritos juntamente con la nueva evolución aquí descrita caen dentro del marco del presente invento.

10

15

20

25

Esta solicitud que corresponde a la presentada en la República Federal Alemana, 14 de Octubre de 1967 bajo el número P -16 71 484.4, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

30

27.10.68



- N O T A -

=====

5 Los puntos de invención propia y nueva que se
presenta para que sean objeto de esta solicitud de Pa-
tente de Invención en España por VEINTE años son los si-
guientes:

10 1.-Un dispositivo de celda o cuba de electro-
lisis, especialmente con al menos dos cátodos en forma
de disco dispuestos verticalmente en el electrolito, ca-
racterizado por ánodos metálicos de cualquier longitud,
especialmente en forma de banda, introducidos con estan-
quidad, bajo la exclusión de aire, en el electrolito a
15 medida de su disolución durante la electrolisis de forma
continua y preferiblemente con desplazamiento intermiten-
te.

20 2.-Un dispositivo según la reivindicación 1, ca-
racterizado por cátodos de disco fijados sobre un árbol
rotatorio y que penetran en una cuba de mercurio provista
con reborde de rebose, y al menos una pared intermedia
dispuesta en la cuba.

25 3.-Un dispositivo según las reivindicaciones 1
ó 2, caracterizado por una cuba de introducción para los
ánodos de banda, dispuesta por encima de la cámara de la
electrolisis, con manantiales de corriente dispuestos ver-
ticalmente dentro de ella, preferiblemente en forma de cha-
pa, y cuerpos huecos variables en lo que se refiere a su
presión interior.

30 4.-Un dispositivo según la reivindicación 3,
caracterizado por cuerpos huecos a base de materiales
de trabajo naturales o sintéticos, inertes con relación

2 FEB 1970

al electrolito.

5.-Un dispositivo según las reivindicaciones 1 a 4, caracterizado por ánodos de banda, que son llevados a cualquier longitud por soldadura fusión y/o compresión.

5
6.-Un dispositivo según las reivindicaciones 1 a 5, caracterizado por su aptitud para ser utilizado para la preparación de compuestos alcoholmetalicos, especialmente compuestos de tetraalcohol plomo, utilizando compuestos complejos organo-metalicos, especialmente compuestos complejos aluminio-órganicos, en calidad de electrolito.

15

7.-Un dispositivo de celda o cuba de electrolysis.

20
Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede representado en los dibujos que se acompañan y con los fines que se han especificado.

Esta Memoria consta de diecisiete hojas escritas a máquina por una sola cara.

Madrid,

P.A.

2 FEB 1970

25

Alberto de Elizaburt
Por el autor.

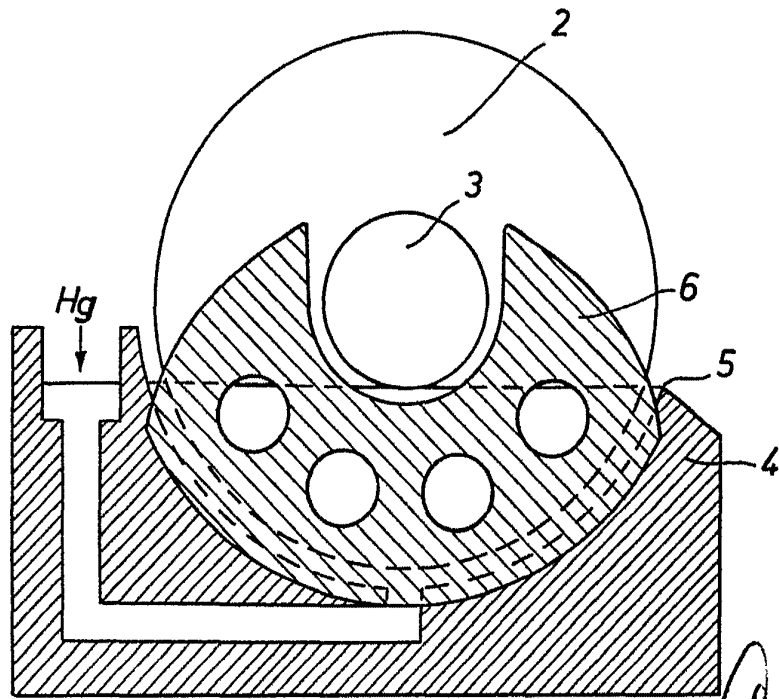
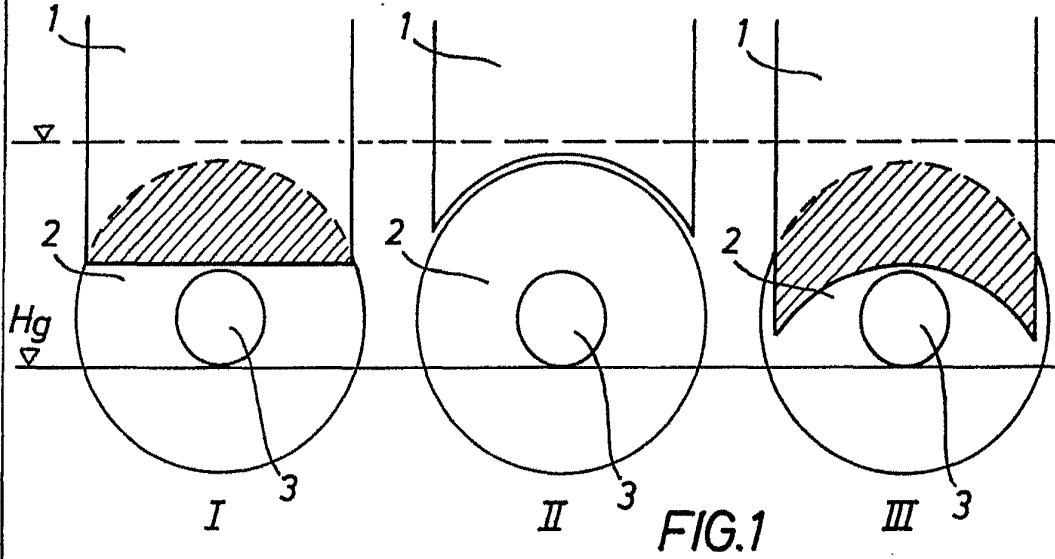


FIG. 2

Handwritten signature or initials.

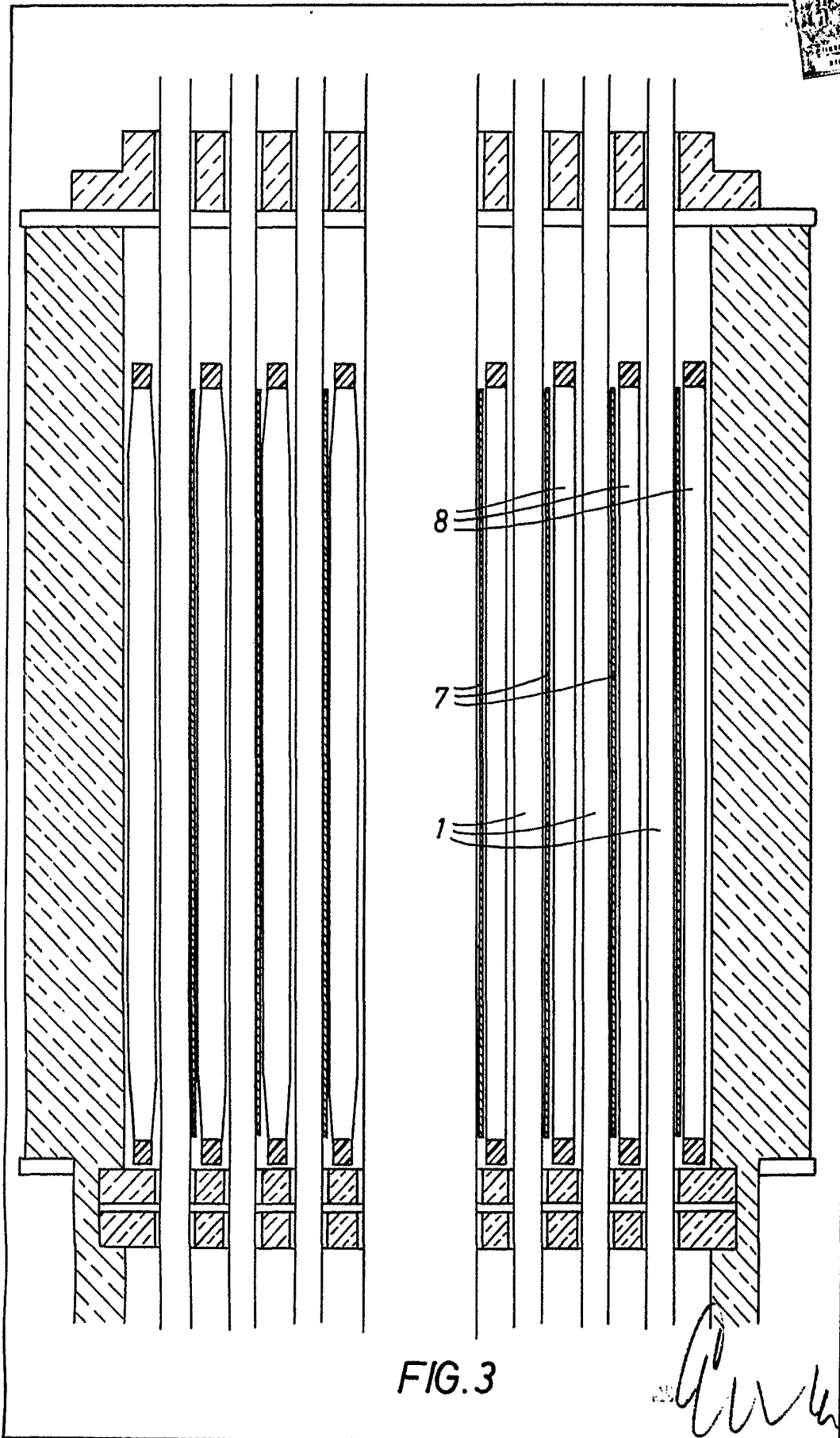
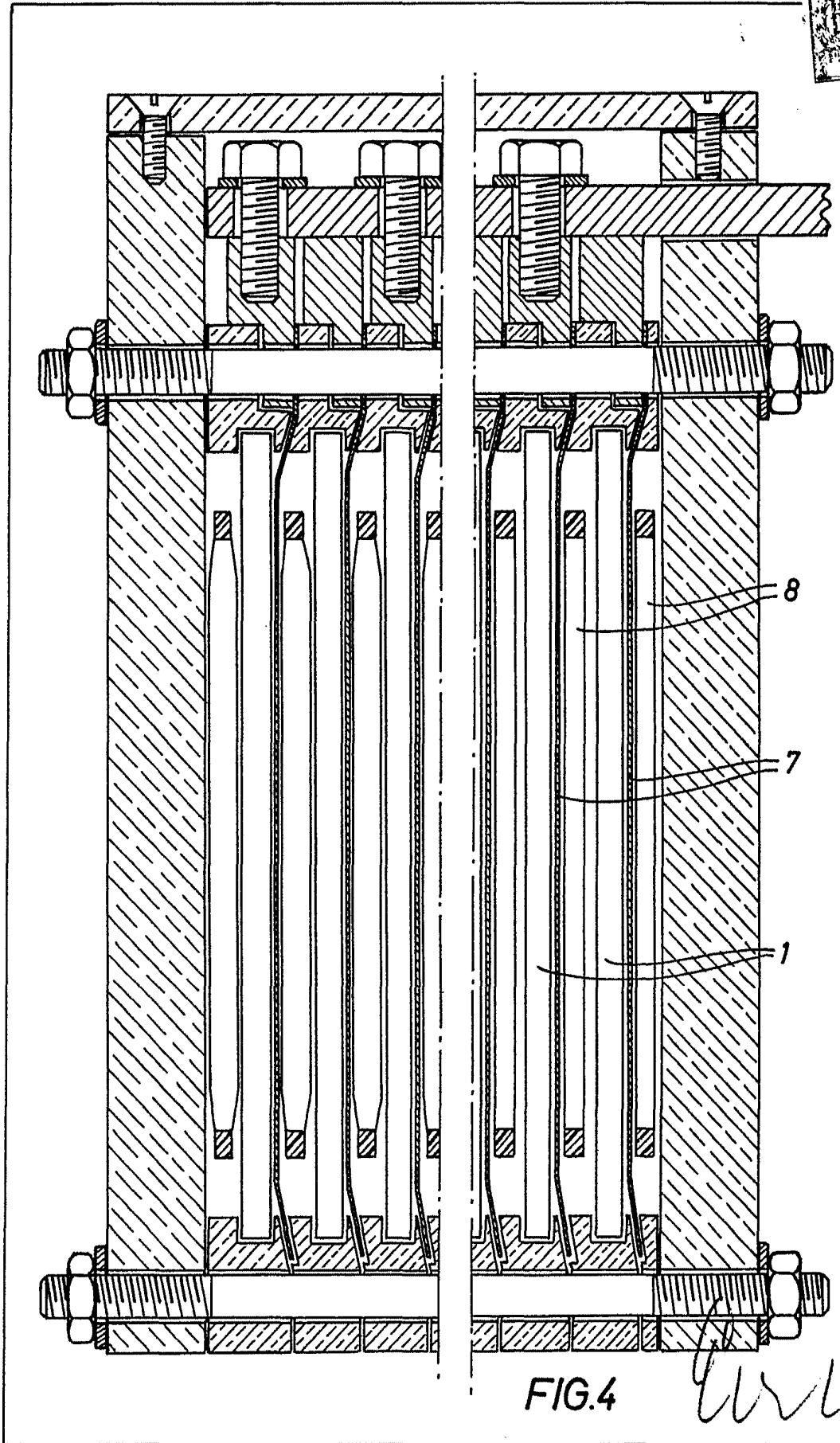


FIG. 3

[Handwritten signature]



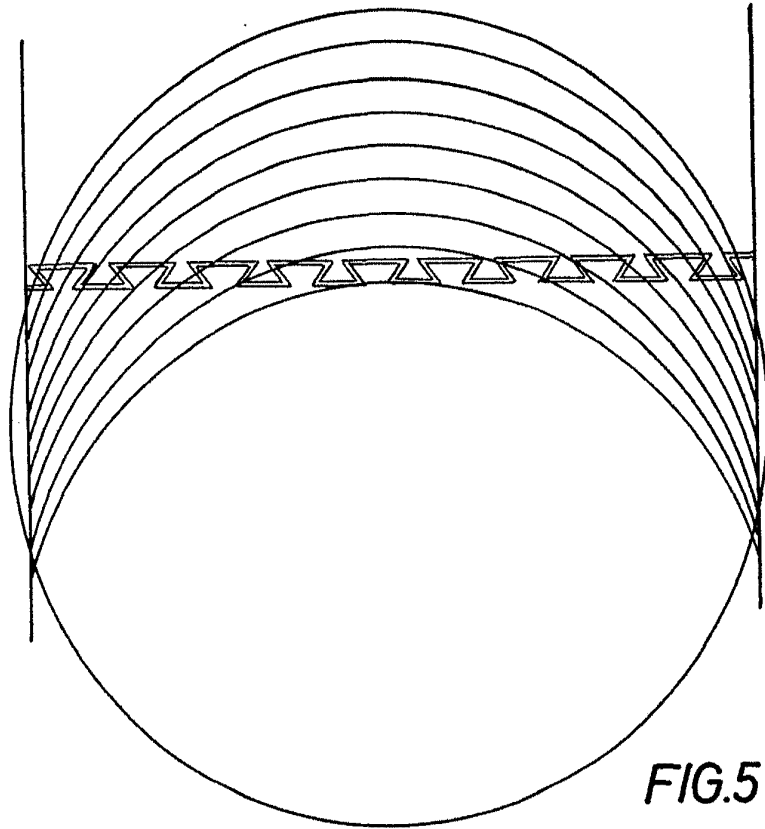


FIG.5

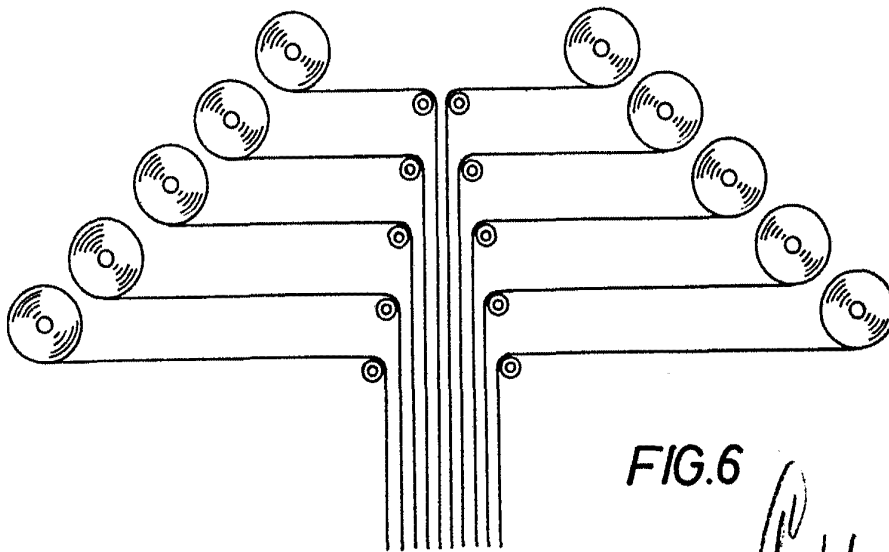


FIG.6

Handwritten signature or initials.