



(12)

CERERE DE BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: **a 2019 00511**

(22) Data de depozit: **23/08/2019**

(41) Data publicării cererii:
26/02/2021 BOPI nr. **2/2021**

(71) Solicitant:
• **INSTITUTUL NAȚIONAL DE
CERCETARE-DEZVOLTARE PENTRU
MICROTEHNOLOGIE-IMT BUCUREȘTI,
STR.EROU IANCU NICOLAE 126A,
VOLUNTARI, IF, RO**

(72) Inventatori:
• **ION MARIAN, STR.DOBRUN, NR.2,
BL.M58, SC.1, AP.38, SECTOR 5,
BUCUREȘTI, B, RO;**

• **MOLDOVAN CARMEN AURA,
BD. ION MIHALACHE NR.166, BL.2, SC.B,
AP.35, SECTOR 1, BUCUREȘTI, B, RO;**
• **SAVIN MIHAELA, STR.EROILOR, NR.14A,
PANTELIMON, IF, RO;**
• **DINULESCU SILVIU,
BD.ION C.BRĂȚIANU NR.5, BL.D6, SC.C,
ET.1, AP.2, PITEȘTI, AG, RO;**
• **STANCIU IRINA,
ȘOS.NICOLAE TITULESCU NR.3, BL.A1,
SC.1, ET.9, AP.71, SECTOR 1,
BUCUREȘTI, B, RO**

(54) **PROCEDEU DE FABRICARE A UNUI SENZOR FLEXIBIL
DE PRESIUNE CU POSIBILE APLICAȚII MEDICALE**

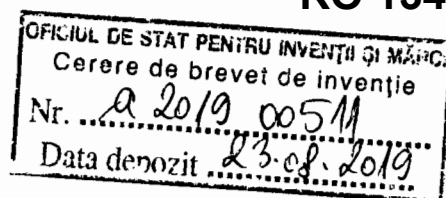
(57) Rezumat:

Invenția se referă la un procedeu de fabricare a unui senzor flexibil de presiune utilizat pentru aplicații în domeniul medical. Procedeu conform invenției are următoarele etape: curățirea substratului format din folie PET în plasmă de O₂, depunerea de filme subțiri de Au cu grosimea de 200 nm prin tehnica evaporării în vid, se configurează masterul canalului microfluidic folosind un fotorezist negativ SU-8 2050, se trece la fabricarea membranei de PDMS peste matrița canalului microfluidic, cele două suprafețe flexibile se funcționalizează cu soluție APTES 5% în C₂H₅OH timp de 20 min.

Pentru PDMS și cu 5% soluție GPTES în C₂H₅OH pentru folia PET timp de 3 ore, canalul microfluidic se umple cu electrolit C₂H₆O₂ printr-unul din orificiile rezervoarelor canalului microfluidic folosind o seringă, iar în final se realizează lipirea contactelor electrice de pad - urile traductorilor pentru conectare la echipamentul de măsură.

Revendicări: 1
Figuri: 12





Procedeu de fabricare a unui senzor flexibil de presiune cu posibile aplicatii medicale

Descriere Inventie

Inventia se refera la procedeu de obtinere a unui senzor flexibil de presiune care utilizeaza traductoare distribuite pe lungimea unui canal microfluidic pentru a detecta incarcările statice si dinamice. Canalul microfluidic este incorporat intre doua membrane sensibile, transparente si biocompatibile: polidimetilsiloxan (PDMS) si polietilen tereftalat (PET) si constituie elementul senzorial al dispozitivului. Presiunea externa aplicata deformeaza membrana, provocand modificari ale rezistentei in stratul microfluidic.

Problema tehnica pe care o rezolva inventia de fata o constituie folosirea materialelor flexibile, biocompatibile, ce se cuantifica intr-un timp redus de fabricare, avand costuri semnificativ mai mici fata de metodele deja existente. Senzorul fabricat prin metoda mentionata dispune de senzitivitate ridicata, limita de detectie mica si timp de raspuns ridicat, caracteristici ce sunt absolut obligatorii pentru a putea functiona si a putea fi competitiv pe piata in domeniu.

Domeniul de aplicare este cel medical (monitorizarea pulsului, a tensiunii arteriale si a batailor inimii). In prezent, in Romania, nu exista senzori flexibili de presiune foarte sensibili care pot fi utilizati pentru inregistrarea continua a pulsului si tensiunii arteriale sau pentru colectarea informatiilor de baza privind sanatatea. Pe plan international exista numeroase referiri la senzorii flexibili in domeniul medical [1,2] cat si asupra senzorilor sensibili in regimul de presiune medie (10-100 kPa), inregistrandu-se progrese remarcabile in aplicarea acestor senzori in dispozitivele mobile de monitorizare a sangelui si pulsului [3,4]. **Noutatea** prezentei inventii consta in **fluxul tehnologic unic** pentru fabricarea senzorului senzor flexibil de presiune cu posibile aplicatii medicale. Spre deosebire de rezultatele mentionate in citarile de mai sus inventia prezinta avantaje incontestabile prin folosirea materialelor ieftine, flexibile, biocompatibile, avand costuri semnificativ mai mici fata de metodele deja existente. In plus,

In mare masura, proprietatile materialului determina performanta dispozitivelor, cum ar fi plierea si indoirea arbitrara fara a afecta alte performante ale dispozitivelor, care depind de caracteristicile materialelor. Materialele pentru dispozitivele flexibile nu ar trebui sa aiba numai o elasticitate adecvata, ci si performante mecanice si electrice ridicate. Exista diferite substraturi flexibile utilizate pentru senzorii aplicati in diferite domenii. Dintre acestea amintim filmul de PET care este folosit pe scara larga datorita pretului scazut si performantelor sale multiple, cum ar fi transparenta, duritatea, rezistenta mecanica buna si rezistenta la temperatura. PDMS este considerat a fi cea mai buna alegere pentru substraturile elastice datorita flexibilitatii excelente si proprietatilor termice si dielectrice ridicate [5]. Pentru traductori, nanoparticulele metalice, inclusiv cele de Au, Ag, Al si Cu, sunt considerate materiale de baza pentru realizarea senzorilor flexibili datorita conductivitatii lor electrice remarcabile.

Principalele **avantaje** ale procedeuului descris de noi sunt:

- folosirea unor materiale flexibile, biocompatibile avand costuri scazute de fabricatie;
- utilizarea unui fluid cu viscozitate scazuta ce permite dispozitivului sa atinga o valoare ridicata a sensibilitatii ($2,5 \text{ kPa}^{-1}$) precum si un raspuns rapid (de ordinul zecilor de milisecunde) in urma stimulilor mecanici. Sensibilitatea ridicata a senzorului permite obtinerea unui semnal complet al formei de unda chiar si atunci cand utilizatorul atinge doar aplatizarea partiala a arterei prin aplicarea unei presiuni minime asupra acesteia.



Procedeu de fabricare a unui senzor flexibil de presiune cu posibile aplicatii medicale face obiectul prezentei inventii. Aceasta procedura este extrem de importanta deoarece imbunatateste semnificativ caracteristicile unui senzor de presiune flexibil: transparenta, ultraflexibilitate, biocompatibilitate. Performantele acestuia permit aplicarea senzorului la un sistem confortabil de tonometrie arteriala care poate fi utilizat pentru uz casnic sau pe o platforma mobila, spre deosebire de sistemele actuale comerciale de tonometrie arteriala care sunt mai potrivite pentru utilizare de catre persoanele cu instruire medicala sau folosite intr-un cadru clinic specializat. Tonometria arteriala reprezinta o metoda pentru masurarea neinvaziva a tensiunii arteriale si se bazeaza pe principiul Pascal de masurare a presiunii rezultate pe aria de compresie ca urmare a exercitarii unei forte externe asupra peretelui arterei. Perturbatiile asociate proprietatilor pielii si tesuturilor interpusse intre senzor si peretele arterei pot fi neglijate [6]. De obicei, masuratoarea se efectueaza prin intermediul unui senzor de presiune avand caracteristici mecanice care sa permita fixarea adecvata la nivelul incheieturii mainii pentru un timp mai indelungat, precum si caracteristici electrice care sa permita inregistrarea continua a formei de unda a presiunii arteriale.

Procedeu de fabricare a senzorului flexibil de presiune cu posibile aplicatii medicale presupune parcurgerea urmatoarelor etape:

Fabricare traductoare de Au: Filmele de Au (200 nanometri) au fost depuse prin tehnica evaporarii in vid, folosind echipamentul dedicat Edwards. Substratul folosit a fost folie de PET, supus in prealabil unui tratament de curatire uscata uscata in plasma de O₂ folosind echipamentul RIE. Parametri de proces au fost urmasorii: Putere = 100W; Presiune = 20Pa; Debit oxigen = 40 cm³/min (sccm); Timp = 40 secunde;

Fabricare membrana PDMS: Materialul folosit pentru canalul microfluidic este SU-8 2050 (un fotorezist negativ care permite obtinerea de structuri cu adancimi incepand de la 10 µm.) Fluxul tehnologic al procesului fotolitografic de depunere al SU8 pe un substrat de sticla (10 cm * 10 cm): Tratament cu plasma de O₂ timp de 5 minute, la 150W; Depunere SU8 (centrifugare la 2000 rpm); Tratament termic - 65°C timp de 5 minute, apoi la 95°C timp de 10 minute; Expunerea la UV M1 timp de 30 sec.; Tratament postexpunere la 65 ° C, timp de 2 minute si la 95 ° C timp de 8 minute; Dezvoltarea mR-Dev 600, timp de 7 minute; Tratament termic - 150°C timp de 20 de minute.

Contactare permanenta suprafete flexibile. Pentru lipirea si etanseizarea membranei de PDMS pe folia de PET/Au, s-a apelat la functionalizarea prin metodele APTES (3-aminopropyltrimethoxysilane)/PDMS si GPTES (3-Glycidoxypropyltriethoxysilane)/PET astfel: Clatire membrana PDMS cu Et-OH si uscare la temperatura camerei;

Expunere in Plasma de O₂ a membranei PDMS. Parametri de proces: Putere: 20W, Presiune-20Pa, Debit O₂-20sccm;

Functionalizare membrana PDMS cu solutie APTES 5% in C₂H₅OH, timp de 20 minute;

Clatire folie PET cu Et-OH si uscare la temperatura camerei apoi 5 minute la 50°C;

Expunere in Plasma de O₂ a foliei PET. Parametri de proces: Putere: 20W, Presiune-20Pa, Debit O₂-20sccm;

Functionalizare folie PET cu 5% solutie GPTES in C₂H₅OH timp de 3 ore;

Suprapunere membrana PDMS cu folie PET si lasate peste noapte la temperatura camerei.



Umplere canal microfluidic cu electrolit printr-unul din orificiile rezervoarelor canalului microfluidic, folosind o seringă. Electrolitul cu cele mai bune caracteristici a fost $C_2H_6O_2$.

Caracterizare senzor

Caracterizare optica, morfologica si electrica a traductorilor din Au;

Caracterizare materiale flexibile. Caracterizarea functionalizarii suprafetelor a fost facuta prin FTIR (Fourier Transform Infrared Spectroscopy) precum si prin masuratori de unghi de contact. Pentru evaluarea caracteristicii de transfer (rezistenta versus presiune) si functionalitatii pe termen lung a senzorului, a fost creat in LabView un program care permite efectuarea periodica a unor masuratori de rezistenta in curent continuu. De asemenea, in versiunea imbunatatita a setup-ului de masura, s-a apelat la un generator de presiuni in impulsuri, pentru a putea mima cat mai real conditiile de masura pentru achizitia functiei de unda a tensiunii arteriale umane.

Avantajele procedurii de fabricare a unui senzor flexibil de presiune cu posibile aplicatii medicale fata de ale procedee deja existente constau in folosirea materialelor ieftine, flexibile, biocompatibile ce se cuantifica intr-un timp redus de fabricare, avand costuri semnificativ mai mici fata de metodele deja existente. Senzorul fabricat prin metoda mentionata dispune de senzitivitate ridicata, limita de detectie mica si timp de raspuns ridicat, caracteristici ce sunt absolut obligatorii pentru a putea functiona si a putea fi competitiv pe piata in domeniu.

Se da, in continuare, exemplul de realizare a procedurii de fabricare, conform inventiei, in legatura cu figurile care reprezinta:

Fig. 1 Layout-ul senzorului propus. Caracteristici dimensionale: Grosime totala -1200 μm ; Lungime - 18 mm; Latime - 15 mm; $d_E = 1500\mu\text{m}$ (distanța între electrozi); Detalii figura 1: a) Membrana PDMS; b) Rezervoare electrolit; c) Canal microfluidic; d) Folie PET; e) Lungime substrat PET 15mm; f) Traductoare (Au); g) Inaltime membrană PDMS 1 mm

Fig. 2 Traductorul de Au si membrana microfluidica inainte de asamblarea acestora pentru realizarea senzorului de presiune;

Fig. 3 Imagini optice pentru canalul microfluidic din PDMS peste traductoarele din Au;

Fig.4 Fig.4 (A) Crearea gruparilor OH pe suprafata PDMS-ului (a) si a substratului din plastic (PET - b) prin tratament in plasma de O_2 (50W-1minut). (B) Ancorarea aminosilanului si epoxisilanului pe PDMS (a) si PET (b) . (C) Formarea contactului permanent între cele doua suprafete (12 ore la temperatura camerei) (*Lab Chip*, 2010, 10, 1274-1280);

Fig. 5 Spectrele FTIR (Fourier Transform Infrared Spectroscopy) pentru A) PDMS/APTES si B) PET/GPTES;

Fig. 6 A) Unghiul de contact pentru APTES/PDMS inainte (109°) si dupa (82°) tratamentul in plasma de O_2 ; B) Unghiul de contact pentru GPTES/PET inainte (78°) si dupa (53°) tratamentul in plasma de O_2 ;

Fig. 7 Setup-ul de masura initial, cu senzorul (a) conectat la bornele multimetrului digital (b); datele sunt trimise pentru salvare catre programul LabView (c);

Fig. 8 Variatia rezistentei pentru senzorul de presiune fabricat (unsingur traseu). A) Presiuni de pana la 80 mmHg; B) Presiuni de pana la 120 mmHg. Presiunea initiala a fost 0. Timp de masura-2 minute;

Fig. 9 Setup-ul de masura imbunatatit (Versiunea Beta) cu senzorul (a) conectat la multiplexorul digital (c) asezat pe bratul artificial (b) prin care circula lichidul ajutat de generatorul de impulsuri (d);

Fig. 10 Interfata LabVIEW a instrumentului virtual conceputa pentru verificarea si studierea functionalitatii senzorului de presiune;

Fig. 11 Caracterizare electrica cu Versiunea Beta pentru un senzor fabricat (presiuni generate de pana la 120 mm Hg);

Fig. 12 Calibrarea senzorului pentru presiuni de pana la 120 mmHg;

Din masuratorile efectuate asupra senzorului fabricat rezulta o dependenta liniara in crestere a rezistentei fata de valori mici ale presiunii aplicate, rezultatele fiind in concordanta cu cele teoretice.

Per total, caracteristicile unice ale transparentei, configurarii senzorului si flexibilitatii permit aplicarea senzorului la un sistem confortabil de tonometrie arteriala care poate fi utilizat pentru uz casnic sau pe o platforma mobila, spre deosebire de sistemele actuale comerciale de tonometrie arteriala care sunt mai potrivite pentru utilizare de catre persoanele cu instruire medicala sau folosite intr-un cadru clinic specializat.

Exemplu:

curatire uscata a substratului (folie PET) in plasma de O₂ folosind echipamentul RIE (Reactive Ion Etcher), folosindu-se urmatoarele valori ale parametrilor de proces: Putere = 100W; Presiune = 20Pa; Debit oxigen = 40 cm³/min (sccm); Timp = 40 secunde;

depunere filme subtiri de Au: Filmele de Au (200 nanometri) au fost depuse prin tehnica evaporarii in vid, folosind echipamentul dedicat Edwards. Temperatura substratului fost mentinuta la o valoare scazuta in timpul depunerii . Depunerea s-a realizat intr-o atmosfera de argon pur la o presiune de 5×10^{-5} pana la 2×10^{-3} torr, puterea fiind de 150 W. Substratul folosit a fost folie de PET, degresata in prealabil cu ultrasunete intr-o solutie de detergent diluat, clatita in apa deionizata, apoi uscata in atmosfera de N₂ inainte de a fi introdusa in incinta de depunere;

configurare master canal microfluidic: materialul folosit pentru canalul microfluidic este SU-8 2050. Fluxul tehnologic al procesului fotolitografic de depunere al SU8 pe un substrat de sticla (10 cm * 10 cm) este urmatorul: Tratament cu plasma O₂ timp de 5 minute, la 150W, apoi depunerea de SU8 prin centrifugare la 2000 rpm. A urmat un tratament termic la 65°C timp de 5 minute, apoi la 95°C timp de 10 minute, apoi expunerea la UV M1 timp de 30 secunde si de un tratament postexpunere la 65 ° C, timp de 2 minute si la 95 ° C timp de 8 minute. Apoi a urmat dezvoltarea mR-Dev 600, timp de 7 minute si un tratament termic la 150°C timp de 20 de minute;

caracterizare filme subtiri de Au: Morfologia suprafetei filmelor de Au a fost studiata de Microscopul de Forta Atomica (Atomic Force Microscope - AFM) si microscopul cu scanare de electroni (Scanning Electron Microscope - SEM). De asemenea, s-au efectuat si teste de aderenta a metalului pe folia de PET;

obtinerea membranei de PDMS: peste matrita canalului microfluidic se toarna un amestec de 10 mL elastomer siliconic + 1 mL agent de intarire, indepartandu-se, in prealabil, eventualele goluri de O₂ prin agitare mecanica.

pregatire functionalizare membrana PDMS: clatire cu Et-OH si uscare la temperatura camerei urmata de expunere in plasma de O₂ cu urmatorii parametri de proces: Putere: 20W, Presiune-20Pa, Debit O₂-20sccm;

functionalizare membrana PDMS cu solutie APTES 5% in C₂H₅OH, timp de 20 minute urmata de expunere in plasma de O₂ a foliei PET. Parametri de proces: Putere: 20W, Presiune-20Pa, Debit O₂-20sccm;

pregatire functionalizare folie PET prin clatire folie cu Et-OH si uscare la temperatura camerei apoi 5 minute la 50°C urmata de expunere in plasma de O₂ a foliei PET. Parametri de proces: Putere: 20W, Presiune-20Pa, Debit O₂-20sccm;

functionalizare folie PET cu 5% solutie GPTES in C₂H₅OH timp de 3 ore;

contactare permanenta a suprafetelor flexibile prin suprapunerea membranei PDMS cu folia PET si lasate peste noapte la temperatura camerei;

caracterizare materiale flexibile. Caracterizarea functionalizarii suprafetelor a fost facuta prin FTIR (Fourier Transform Infrared Spectroscopy) precum si prin masuratori de unghi de contact.

umplere canal microfluidic cu electrolit printr-unul din orificiile rezervoarelor canalului microfluidic, folosind o seringă. Electrolitul cu cele mai bune caracteristici a fost C₂H₆O₂.

lipire contacte electrice de pad-urile traductorilor pentru conectare la echipamentul de masura;

pentru evaluarea caracteristicii de transfer (rezistenta versus presiune) si functionalitatii pe termen lung a senzorului, a fost creat in LabView un program care permite efectuarea periodica a unor masuratori de rezistenta in curent continuu.

caracterizare electrica a senzorului cu versiunea initiala a setup-ului experimental: se aplica o sarcina mecanica externa pe fiecare pereche de traductori si se obtin variatile rezistentei pentru cele 4 perechi de traductoare inainte si dupa aplicarea sarcinii. Se seteaza numarul de masuratori ce se doresc achizitionate, precum si intervalul de timp dintre cele doua masuratori. Programul afiseaza pe un grafic valorile masurate in timp real si traseaza o curba cu evolutia in timp a rezistentei senzorului. La sfarsitul achizitiei, intr-o fereastra noua se cere alegerea locatiei si a denumirii fisierului unde se vor salva datele obtinute.

caracterizarea electrica a senzorului de presiune cu versiunea imbunatatita a setup-ului de masura. S-a apelat la un generator de presiuni in impulsuri si la un brat artificial pentru a putea mima cat mai real conditiile de masura pentru achizitia functiei de unda a tensiunii arteriale umane.

validarea masuratorilor prin repetabilitate. Masuratorile s-au efectuat in 3 zile consecutive, astfel urmarindu-se evolutia raspunsului electric in functie de timpul de relaxare dar si pentru investigarea reproductibilitatii si a sensibilitatii senzorului de presiune.

construirea curbei de calibrare pentru senzorul de presiune fabricat.

Bibliografie

- [1] G. Schwartz et al, *Nat. Commun.*, 2013, 4, 1859;
- [2] X. Wang et al, *Adv. Mater.*, 2014, 26, 1336;
- [3] C. L. Choong et al, *Adv. Mater.*, 2014, 26, 3451;
- [4] Z. Li and Z. L. Wang, *Adv. Mater.*, 2011, 23, 84;
- [5] Y. Hu et al, *Adv. Mater.*, 2011, 23, 4068;
- [6] G.M. Drzewiecki et al. *J Biomech* 16(2) (1983), 141–152.



REVENDICARI

Revendicarea se refera la procedeul prin care se realizeaza un **senzor flexibil de presiune cu posibile aplicatii medicale**, senzor caracterizat prin aceea ca se realizeaza astfel: curatire uscata a substratului (folie PET) in plasma de O₂ apoi depunere filme subtiri de Au (200 nanometri) prin tehnica evaporarii in vid, temperatura substratului fiind mentinuta la o valoare scazuta in timpul depunerii, depunerea realizandu-se in atmosfera de argon pur la o presiune de 5x10⁻⁵ pâna la 2x10⁻³ torr, puterea fiind de 150 W, **apoi** se configureaza masterul canalului microfluidic folosind un fotorezist negativ (SU-8 2050) apoi se trece la caracterizarea morfologica a filmelor subtiri de Au prin microscopie de forta atomica (Atomic Force Microscope - AFM) si microscopie cu scanare de electroni (Scanning Electron Microscope - SEM) **dupa care** se trece la fabricarea membranei de PDMS peste matrita canalului microfluidic unde se toarna un amestec de 10 mL elastomer siliconic + 1 mL agent de intarire, indepartandu-se, in prealabil, eventualele goluri de O₂ prin agitare mecanica, **apoi** are loc concomitent pregatirea celor 2 suprafete flexibile in vederea functionalizarii acestora cu solutie APTES 5% in C₂H₅OH, timp de 20 minute pentru PDMS, cu 5% solutie GPTES in C₂H₅OH timp de 3 ore pentru folia PET, pregatirea fiind similara pentru ambele suprafete prin expunere in plasma de O₂ cu urmatorii parametri de proces: Putere: 20W, Presiune-20Pa, Debit O₂-200 sccm urmata de clatire cu Et-OH si uscare la temperatura camerei, **urmata** de contactarea permanenta a acestora prin suprapunerea membranei PDMS cu folia PET si lasate peste noapte la temperatura camerei, caracterizarea functionalizarii suprafetelor fiind realizata prin FTIR (Fourier Transform Infrared Spectroscopy) precum si prin masuratori de unghi de contact, **dupa care** se trece la umplerea canalului microfluidic cu electrolit (C₂H₆O₂) printr-unul din orificiile rezervoarelor canalului microfluidic, folosind o seringă, **apoi** se trece la lipirea contactelor electrice de pad-urile traductorilor pentru conectare la echipamentul de masura, **dupa care** se trece la caracterizarea electrica a senzorului cu versiunea initiala a setup-ului experimental aplicandu-se o sarcina mecanica externa pe fiecare pereche de traductori, obrinandu-se astfel variatile rezistentei pentru cele 4 perechi de traductoare înainte si dupa aplicarea sarcinii, setandu-se numarul de masuratori ce se doresc achizitionate, precum si intervalul de timp dintre cele doua masuratori, caracterizarea electrica a senzorului de presiune fiind verificata si cu versiunea imbunatatita a setup-ului de masura, apelandu-se astfel la un generator de presiuni in impulsuri si la un brat artificial pentru a putea mima cat mai real conditiile de masura pentru achizitia functiei de unda a tensiunii arteriale umane, **urmata** de revalidarea masuratorilor prin repetabilitate, timp de 3 zile consecutive, astfel urmarindu-se evolutia raspunsului electric in functie de timpul de relaxare dar si pentru investigarea reproductibilitatii si a sensibilitatii senzorului de presiune, in final obtinandu-se curba de calibrare pentru senzorul de presiune fabricat (prin raportarea rezistentei senzorului la presiunea aplicata).



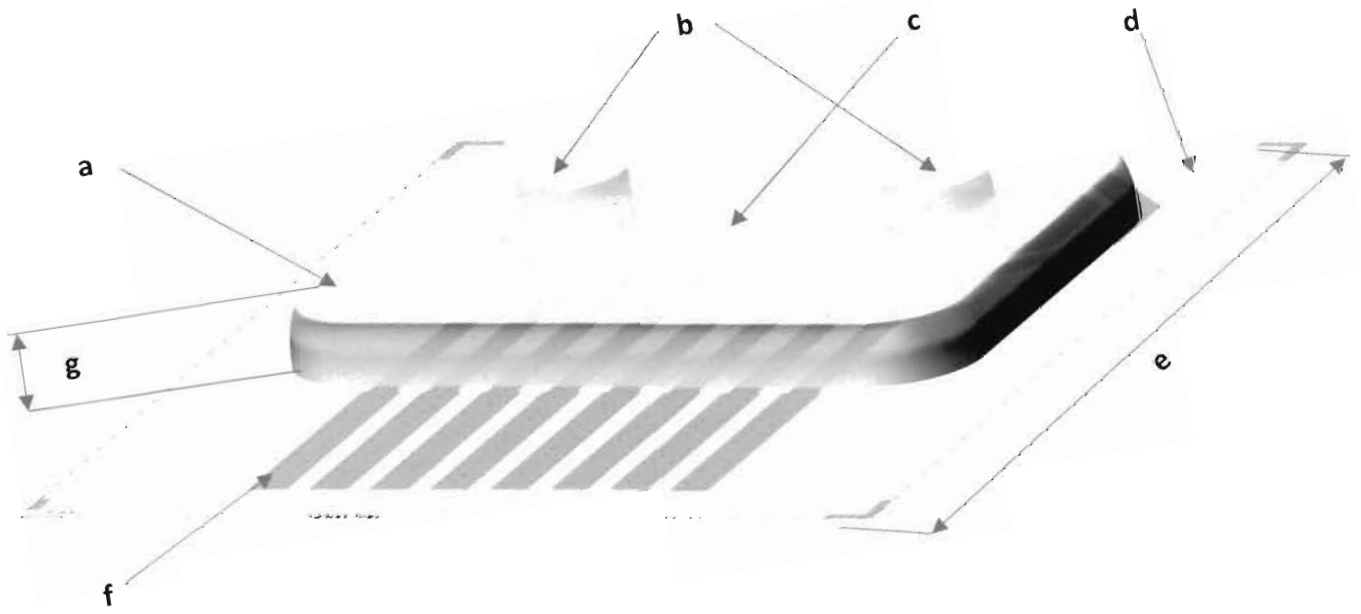


Fig.1



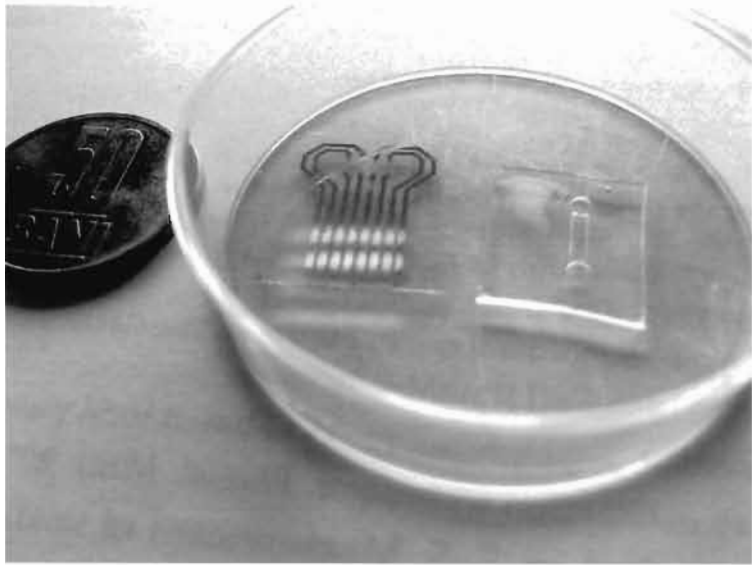


Fig.2

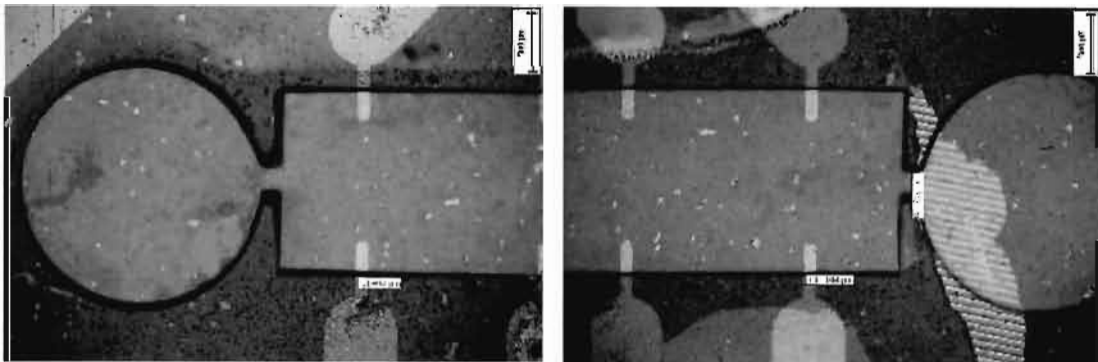


Fig. 3



8

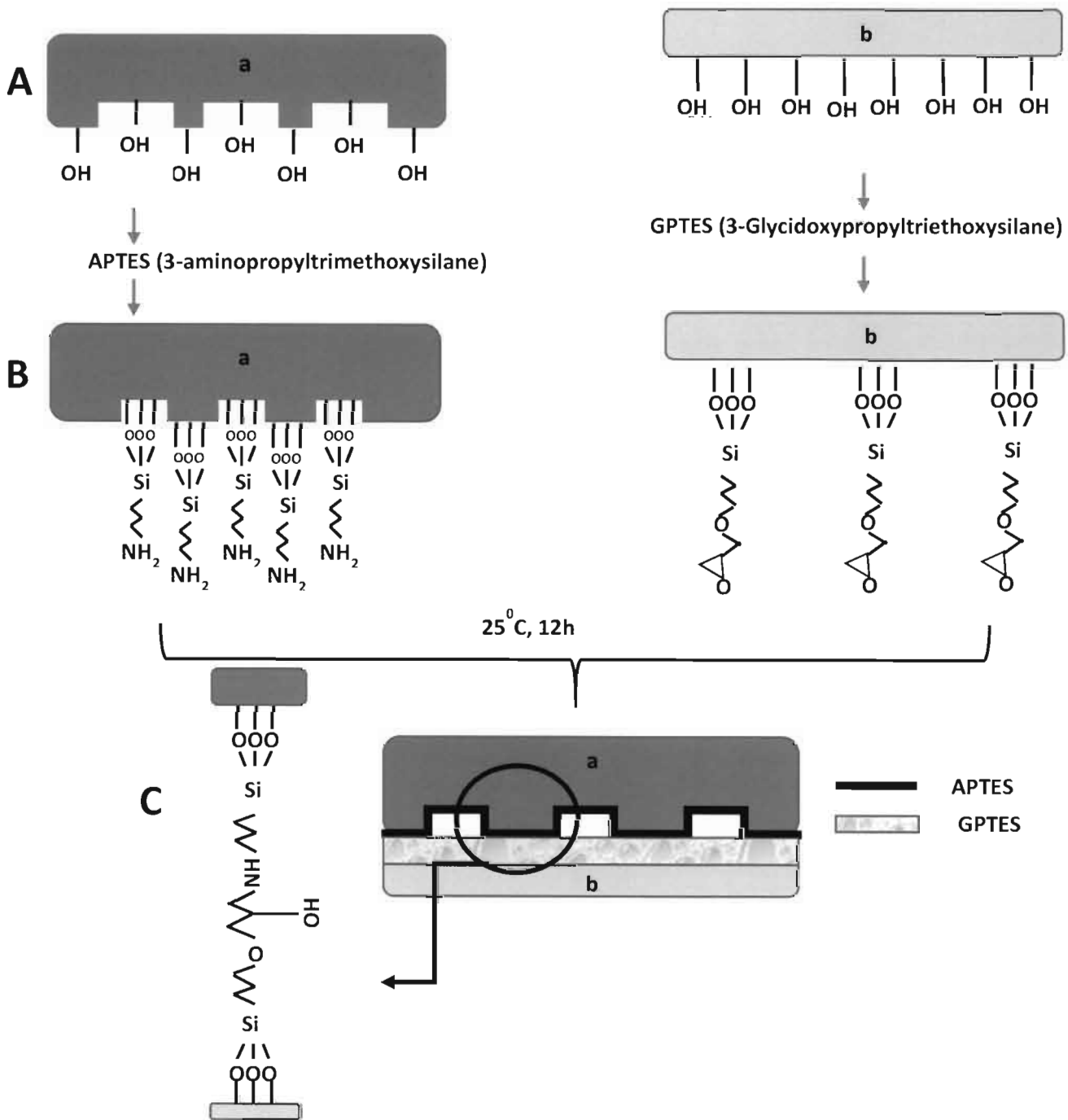


Fig.4



7

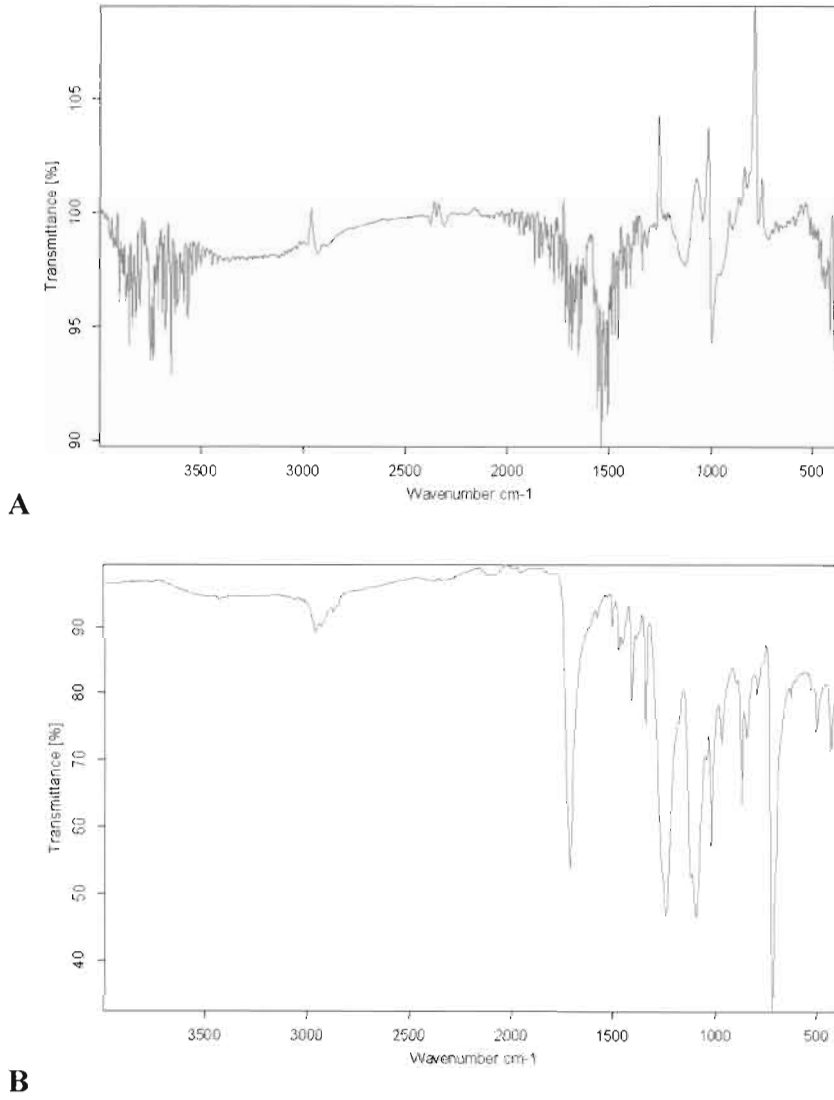


Fig. 5



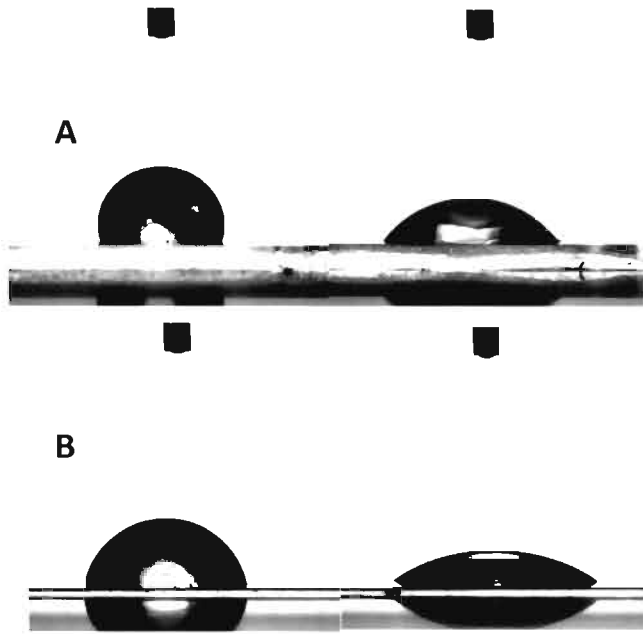


Fig. 6

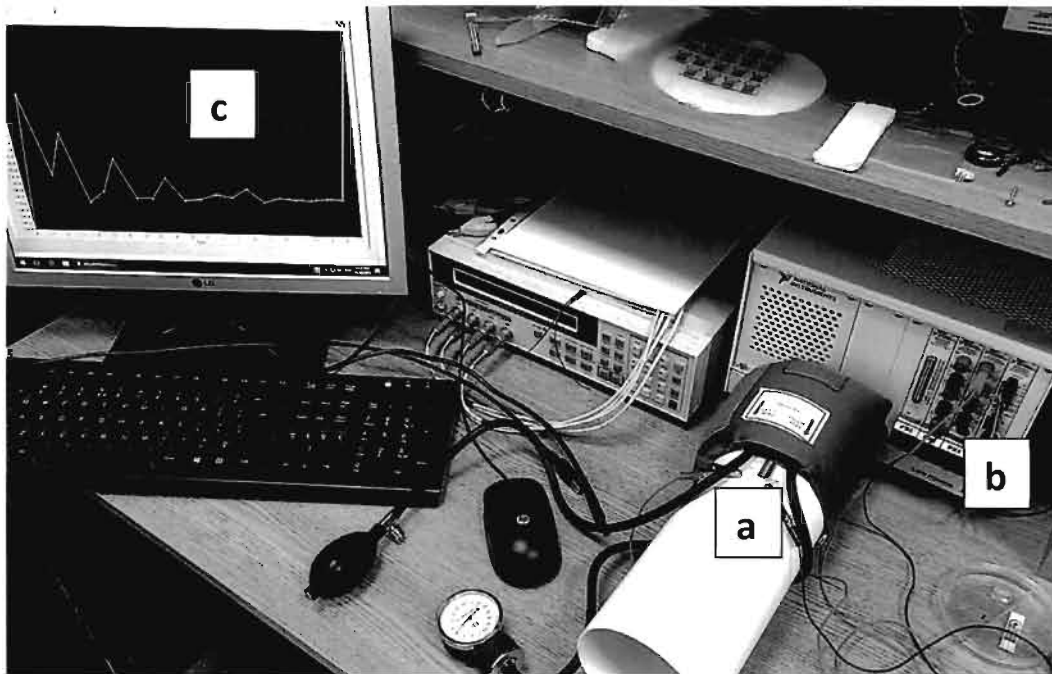


Fig.7

5

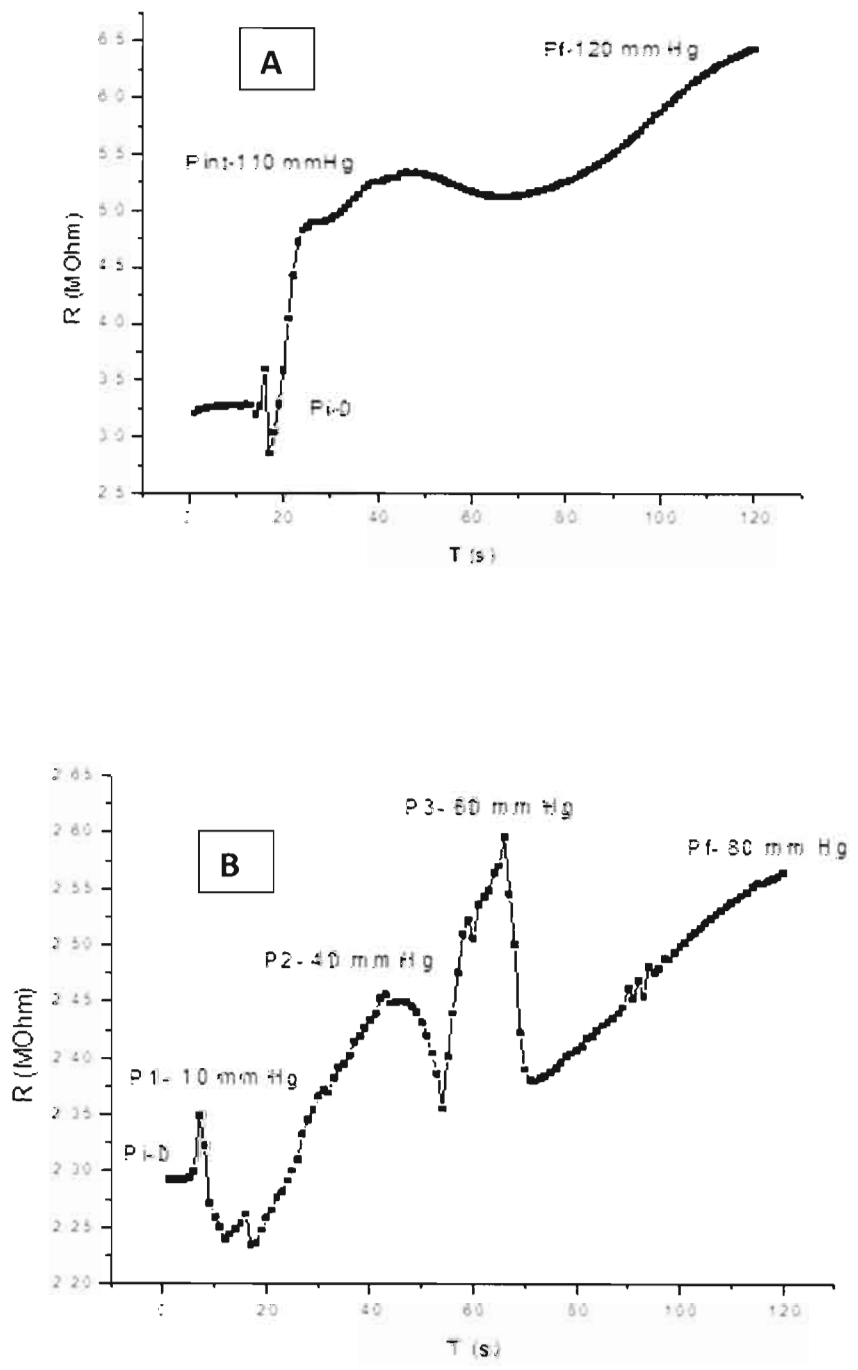


Fig.8



h

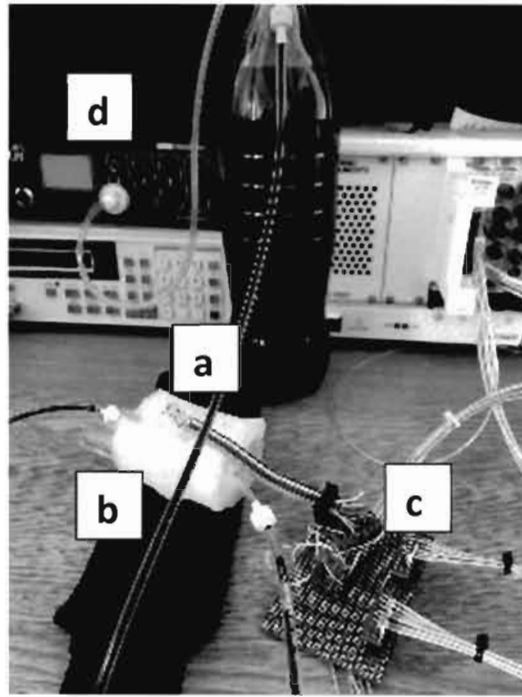


Fig. 9

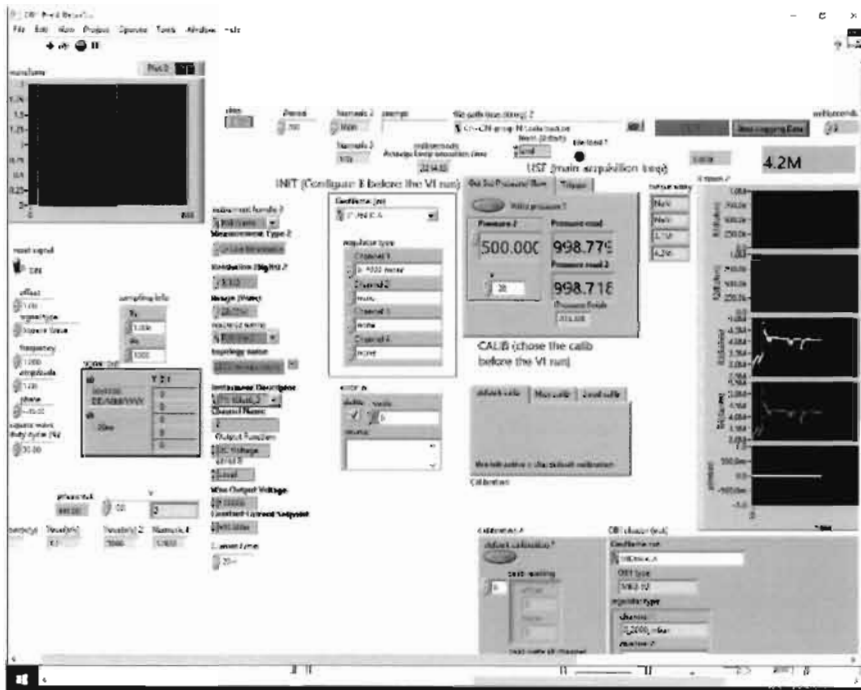


Fig. 10



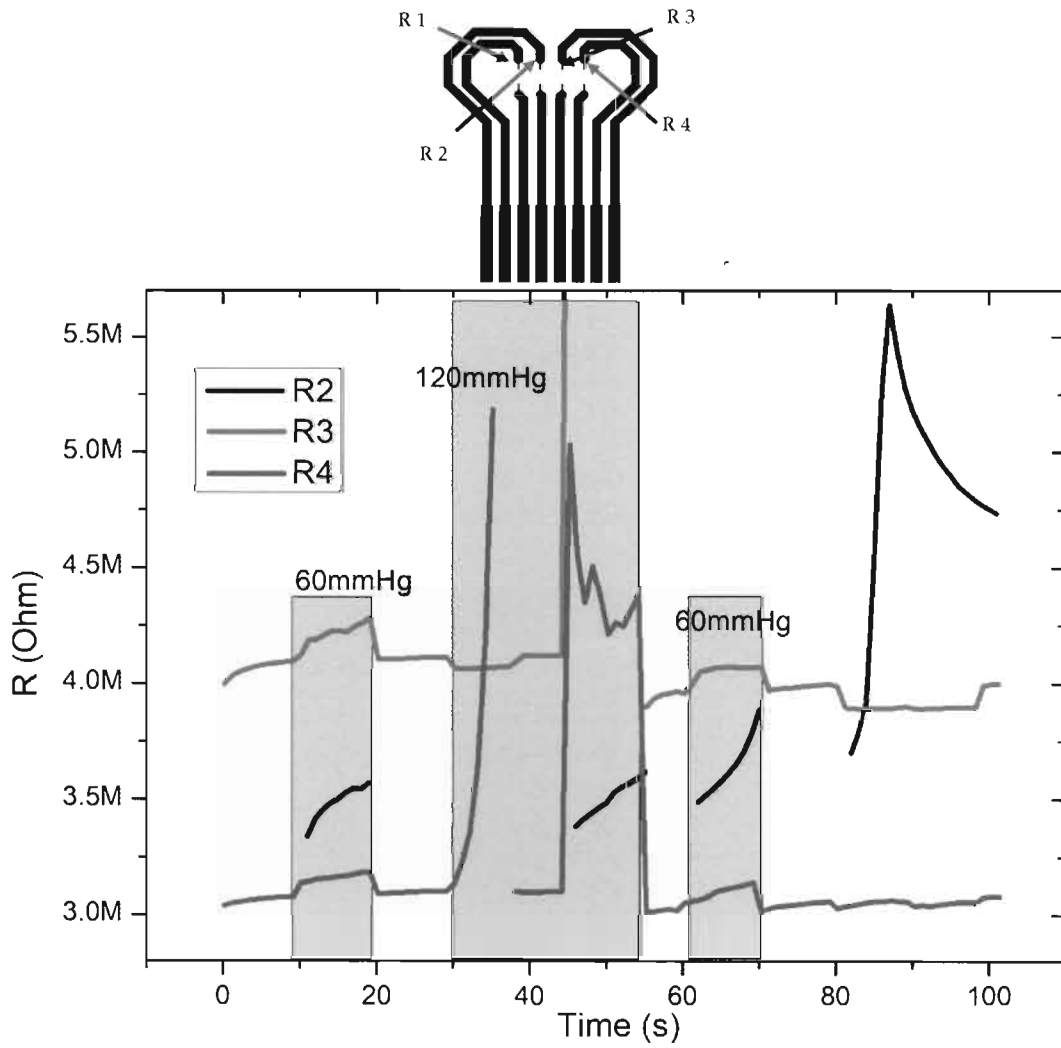


Fig. 11

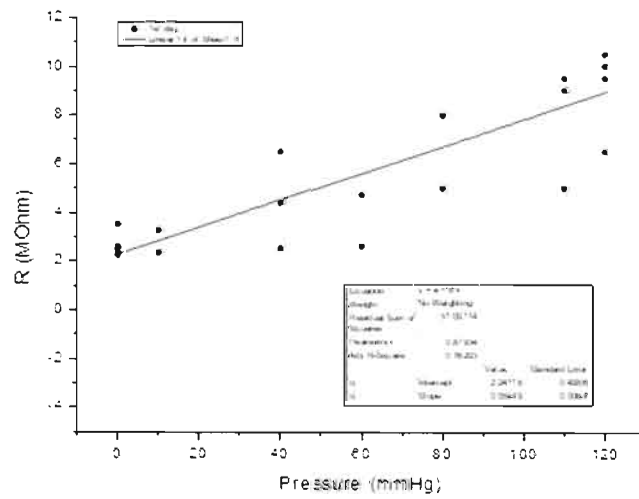


Fig.12

