

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第3810142号
(P3810142)

(45) 発行日 平成18年8月16日(2006.8.16)

(24) 登録日 平成18年6月2日(2006.6.2)

(51) Int.C1.

F 1

C08L 63/00 (2006.01)
C08G 59/42 (2006.01)C08L 63/00
C08G 59/42

請求項の数 4 (全 10 頁)

(21) 出願番号

特願平8-196340

(22) 出願日

平成8年7月25日(1996.7.25)

(65) 公開番号

特開平10-36638

(43) 公開日

平成10年2月10日(1998.2.10)

審査請求日

平成15年7月7日(2003.7.7)

(73) 特許権者 000006035

三菱レイヨン株式会社

東京都港区港南一丁目6番41号

(72) 発明者 伊藤 彰浩

愛知県名古屋市東区砂田橋四丁目1番60号 三菱レイヨン株式会社商品開発研究所内

(72) 発明者 加藤 和夫

愛知県名古屋市東区砂田橋四丁目1番60号 三菱レイヨン株式会社商品開発研究所内

審査官 加賀 直人

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 繊維強化複合材料用エポキシ樹脂組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(A) 内部に部分的に架橋構造を有するゴム粒子 2 ~ 15 重量部、

(B) 炭素数 2 ~ 15 のポリオールのジグリシジルエーテル化物、グリセロールトリグリシジルエーテル、ポリグリセロールトリグリシジルエーテル、トリメチロールプロパングリシジルエーテル、トリメチロールプロパンのプロピレンオキシド付加物のトリグリシジルエーテル、ペンタエリスリトールのプロピレンオキシド付加物のトリグリシジルエーテルおよび水添ビスフェノール類のグリシジルエーテル化物からなる群から選ばれる化合物 40 ~ 90 重量部、

(C) 脂肪族エポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂 5 ~ 70 重量部、

(D) 常温で液体の酸無水物系硬化剤からなり、かつ

(A) ないし (C) の樹脂成分に占める (B) の重量比が 0.4 ~ 0.9 である、繊維強化複合材料用エポキシ樹脂組成物。

【請求項 2】

120 × 1 時間で硬化した樹脂の固有減衰能が 35 % 以上である請求項 1 記載の繊維強化複合材料用エポキシ樹脂組成物。

【請求項 3】

(A) ゴム粒子と (C) 脂肪族エポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂をあらかじめ予備反応した請求項 1 または 2 記載の繊維強化複合材料用エポキシ樹脂組成物。

【請求項 4】

10

20

請求項 1 ~ 3 いずれか一項に記載のエポキシ樹脂組成物とイミダゾール類とからなる纖維強化複合材料用工ポキシ樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、低粘度で硬化性に優れ、粘度の安定性にも優れた纖維強化複合材料（以下 F R P という。）用に適したエポキシ樹脂組成物に関し、更に詳しくは、制振性能、機械的強度および耐熱性に優れる、複合材料に適したエポキシ樹脂組成物に関する。

【0002】

【従来の技術】

マトリックス樹脂を強化纖維で補強した F R P は軽量、高弾性、高強度のメリットを生かして、航空機、船舶、自動車等の構造材料、あるいはロール等の工業材料から釣りざお、ゴルフシャフト、テニスラケット等のスポーツ用途まで、など様々な用途に広く使用されている。

【0003】

近年、F R P には、上述した軽量、高強度および高弾性といった機械的特性向上以外に、スポーツの用途では打球時の振動吸収性能の向上、工業用途では、防音性能の向上、トルク伝達軸の低振動化などの振動を抑制する特性（制振性能）が求められてきている。

【0004】

振動体の制振性能は、減衰正弦波形における隣接する振動の振幅をそれぞれ X_1 、 X_2 をしたとき、次式（1）で示される対数減衰率 η が大きいほど、優れた制振性能が得られるこことになる。

【0005】

$$\eta = \ln(X_1 / X_2) \quad \dots \quad (1)$$

【0006】

そして、対数減衰率は損失係数 α を用いて次式（2）で表される。

【0007】

$$\eta = -\alpha \cdot \ln(1 - \alpha) \quad \dots \quad (2)$$

したがって、損失係数 α の大きいものほど優れた制振性能を有しているということができる。

【0008】

振動を効率よく減衰できる制振材を形成するための制振材用組成物としては、従来ポリアミド系樹脂または、ポリ塩化ビニル系樹脂等を主成分としたものが用いられてきた。

【0009】

しかしながら、ポリアミド系樹脂を主成分とした制振材用組成物から成形した制振材は耐水性、耐薬品性の点で劣り、機械的強度も小さい。ポリ塩化ビニル系樹脂を主成分とした制振材用組成物は複雑な形状の制振材に成形するのが困難であり、さらに少量多他品種の制振材を製造するにはコスト高になるという問題点があった。

【0010】

F R P に制振性を付与する方法としては、強化纖維の最適化や積層構成などの構造設計による方法とマトリックス樹脂の改良による方法に大別できる。前者の方法は、構造自体に制振性能を付与しようとするものであるが、一般に構造体になりうる剛性の高い材料は制振性能が低く、逆に制振性能が高いものは剛性が低いという矛盾を含んだものであり、後者の方法は、振動エネルギーをマトリックス樹脂により熱エネルギーに変えることで制振性能の向上を図ろうとするものである。

【0011】

前者の方法としては、特開平 3 - 234267 号公報に強化纖維にアラミド纖維やポリアリレート纖維を用いることにより制振性能を向上する方法が開示されているが、この方法で得られた F R P は穴あけ加工などの後加工が困難な点に問題がある。

【0012】

10

20

30

40

50

また、特開平3-274143号公報には、シート状の粘弾性材料にガラスクロスを積層して予備成形した後、熱硬化樹脂を含浸成形する制振性能の優れたFRPの成形方法が開示されている。しかし、この成形方法は煩雑な2段階の成形が必要であり、コスト的にスポーツ用途等の汎用品の成形には適用しにくい難点がある。

【0013】

そのほかにも、表面に弾性塗料を塗布することにより制振性能を向上する方法、ラケットの形状や構造を工夫し、衝撃が加わった際、異なる振動を共振させることにより振動を吸収する方法が知られているが、市場の要求に十分対応できるものはまだない。

【0014】

後者のマトリックス樹脂の改良により制振性能を向上する方法としては、特開平2-86615号公報に開示された、多価アルコールとポリイソシアナート化合物を強化纖維存在下で反応させ、FRPを得る技術があるが、得られたFRPはスポーツ用途で要求される剛性が得られない場合がある。

【0015】

また、マトリックス樹脂がガラス転移点付近で損失係数が大きくなる性質を利用し、非晶質エポキシ樹脂とガラス転移温度の低い低分子量有機充填剤（いわゆる可塑剤）を配合することも知られている。しかし、この様なエポキシ樹脂系の制振材は、機械的強度が高く、耐久性、成形性に優れたものを得ようとすると制振性能に低下し、制振性能に優れたものを得ようとすると機械的強度が低く耐熱性、成形性も劣ってしまうという問題点があった。

10

20

【0016】

ところで、FRPの成形方法としては、プリプレグと呼ばれるマトリックス樹脂を強化纖維に含浸した中間材を使用する方法のほか、ハンドレイアップ法、フィラメントワインディング（以下、FWという。）法、レジントランスマーキューリング（以下、RTMという。）法、インジェクション（RIM）法等が挙げられ、プリプレグを経由しないFW法、RTM法、RIM法は低コストの成型法として広く用いられている。

【0017】

これらの成形方法に適用できる樹脂特性は、成形後の機械的特性に優れることはもちろんのこと、強化纖維が配置されている金型に注入可能な程度の低粘度であること、硬化性に優れること、粘度の安定性に優れることが要求されるが、これら成形のために要求される種々の性能と硬化後の制振性能を両立した樹脂はまだ知られていない。

30

【0018】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は上記の現状を解決するものであって、ハンドレイアップ成形法、FW成形法、RTM成形法等に特に好適に用いることができ、比較的低い温度でしかも短時間で成形できるため生産性向上効果も非常に高く、得られたFRPは制振性、耐熱性、機械的強度に優れたエポキシ樹脂組成物および纖維強化複合材料を提供することを課題とする。

【0019】

【課題を解決するための手段】

本発明の要旨は、

40

(A) 内部に部分的に架橋構造を有するゴム粒子2~15重量部、

(B) 脂環式でない脂肪族エポキシ樹脂40~90重量部、

(C) 炭素数2~15のポリオールのジグリシジルエーテル化物、グリセロールトリグリシジルエーテル、ポリグリセロールトリグリシジルエーテル、トリメチロールプロパングリシジルエーテル、トリメチロールプロパンのプロピレンオキシド付加物のトリグリシジルエーテル、ペンタエリスリトールのプロピレンオキシド付加物のトリグリシジルエーテルおよび水添ビスフェノール類のグリシジルエーテル化物からなる群から選ばれる化合物5~70重量部、

(D) 常温で液体の酸無水物系硬化剤からなり、かつ

(A) ないし(C)の樹脂成分に占める(B)の重量比が0.4~0.9である、纖維強

50

化複合材料用工ポキシ樹脂組成物にある。

【0020】

【発明の実施の形態】

本発明に用いるゴム粒子（以下単に（A）という。）とは、ゴム成分の内部に部分的に架橋構造を有するゴムのことであり、ブタジエン系ゴム、アクリル系ゴム等の粒子を例示することができるがこれに限定されるものではない。

【0021】

（A）として用いる少なくとも部分的に架橋したゴム粒子は単独で樹脂組成物に混合しても構わないが、後述する脂肪族エポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂（以下単に（C）という。）にあらかじめ分散混合もしくは分散後エポキシ樹脂と一部分を反応させた架橋ゴム変成エポキシ樹脂とした後に用いても構わない。10

【0022】

このように、（A）および（C）をあらかじめ予備反応させて添加すると、制振性を向上させる面から好ましい。この機構はまだ解明していないが、ゴム成分の末端基とエポキシ樹脂が部分的に結合していることが重要であると推察している。（A）と（C）とを反応することによって得られるエポキシ樹脂は、（A）と（C）の混合物を100～180の温度で必要により触媒を添加して反応させることにより容易に得ることができる。

【0023】

（A）と（C）の反応物として市販あるいはサンプルとして入手可能な架橋ゴム変性したエポキシ樹脂としては大日本インキ化学工業（株）のエピクロンT S R - 960、T S R - 601、日本触媒のC X - M Nシリーズ、日本合成ゴム（株）の架橋ゴム変性エポキシ樹脂を例示することができるが、これに限定するものではない。20

【0024】

本発明に用いる（C）は、室温で液状で、脂肪族でなければ特に制限はないが、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビスフェノールS型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、グリシジルアミン型エポキシ樹脂等の市販のエポキシ樹脂が使用可能であり。目的に応じて適宜使用できる。（C）として用いるエポキシ樹脂は1種類でも構わないが、必要に応じて2種類以上のエポキシ樹脂を混合して使用しても構わない。

【0025】

（C）の粘度は、成形時の取扱い性等の問題から好ましくは室温で200ポイズ以下、さらに好ましくは100ポイズ以下である。室温の粘度がこの範囲上であると、ハンドレイアップ成型法、R T M成型法、F W成型法で成形する場合、非常に取り扱いにくく、表面性の良い成型物が得られない。30

【0026】

また、（C）のエポキシ樹脂に反応希釈剤等を混合し、上記粘度に調整して使用しても構わない。

【0027】

本発明で用いる脂肪族エポキシ樹脂（以下単に（B）という。）としては、エチレングリコール類、プロピレングリコール類、ブチレングリコール類、ネオペンチルグリコール類、1,6ヘキサンジオール類、ジ(6-ヒドロキシヘキシル)エーテル、1,8-オクタンジオール、ジ(8-ヒドロキシヘキシル)エーテル、1,10-デカンジオール、ジ(10-ヒドロキシデシル)エーテル、フェニレンエチレングリコール、ジ(フェニルエチレングリコール)などの炭素数2～15のポリオールのグリシジルエーテル類、グリセロールトリグリシジルエーテル、ポリグリセロールポリグリシジルエーテル、トリメチロールプロパングリシジルエーテルなど、トリメチロールプロパンのプロピレンオキサイド付加物のトリグリシジルエーテルなど、ペンタエリスリトールのプロピレンオキサイド付加物のトリグリシジルエーテルなど、水添ビスフェノール類等をグリシジル化したグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、ヘキサヒドロ無水フタル酸類、テトラヒドロ無水フタル酸類、ダイマー酸類、安息香酸類等をグリシジル化したグリシジルエステル型エポキシ樹脂な4050

どが挙げることができる。

【0028】

(B)は脂肪族エポキシ樹脂は低粘度の方が好ましく、室温で25の時100ポイズ以下が好ましく、さらに好ましくは50ポイズ以下である。

【0029】

本発明のエポキシ樹脂組成物は上述の(A)、(B)および(C)がそれぞれ2~15重量部、40~90重量部および5~70重量部の割合で混合され、さらに(B)が(A)~(C)の樹脂成分に占める重量比が0.4~0.9であることが必要である。さらに好ましい(A)、(B)および(C)の重量比はそれぞれ2~10重量部、50~80重量部および10~50重量部である。

10

【0030】

(A)成分が上記範囲より多い場合、マトリックス樹脂は微細な粉体の(A)成分を多量に配合するために粘度が高くなり、FWやRTM等の成形方法に適用することが困難となる。また、(B)が40重量部未満であると十分な制振性がえられず、90重量部を超えるとFRPとして使用するのに十分な機械的強度および耐熱性が得られない。そして、(C)が上記範囲外であると、得られるFPRは十分な機械的強度および耐熱性が得られない。

【0031】

さらに本発明においては、(A)、(B)および(C)からなる樹脂成分中に(B)が占める重量割合が、40~90重量%であることが必要であり、60~80重量%の範囲にあることがさらに好ましい。

20

【0032】

本発明のエポキシ樹脂組成物は、(A)、(B)および(C)を上記の割合で混合することにより、RTM法もしくはFW法などの成型方法に適用可能な低粘度で、かつ十分な制振性能とFRPとしての機械的強度および耐熱性をバランスよく有するFRPが得られるのである。

【0033】

(D)の常温で液体の酸無水物系硬化剤としては特に制限はしないが、テトラヒドロ無水フタル酸、メチルテトラヒドロ無水フタル酸、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸、無水メチルナジック酸、ドデシル無水コハク酸が好適に用いられ、これらの中から選ばれる1種類以上の酸無水物系の硬化剤を単独で、あるいは2種類以上を混合して用いることが好ましい。添加量としてはエポキシ樹脂成分((A)と(B)を混合したもの)の化学量論量の50~120%であることが好ましく、70~100%であることが更に好ましい。

30

【0034】

本発明のエポキシ樹脂組成物に更に硬化促進剤を加えても構わない。ここで好適に使用できる硬化促進剤は常温で液状、あるいは少しの加温で液化するもの、もしくは融点が硬化温度以下であるもの、上記樹脂組成物に溶解するものが好ましい。融点が60以下であると更に好ましい。また、化学構造的には、1位に活性水素を有する方が得られた樹脂組成物の安定性と反応性のバランスからは更に好ましい。

【0035】

40

この様な硬化促進剤としては、イミダゾール類が好適であり、2-エチル-4-メチルイミダゾールが最も好適に用いられる。

【0036】

硬化促進剤の添加量としては(A)、(B)および(C)の樹脂成分100重量部に対して0.5~5重量部の範囲であることが好ましく、0.5~3重量部であることが更に好ましい。

【0037】

本発明のエポキシ樹脂組成物は非常に低粘度で含浸性に優れるため、ハンドレイアップ、FW、RTMに適用するマトリックス樹脂として特に好適に用いられ、また比較的低い温度でしかも短時間で成形できるため、生産性向上効果も非常に高く、得られたFRPは耐

50

熱性、機械的物性に優れる。

【0038】

本発明のエポキシ樹脂組成物においては、120 × 1時間で硬化させた硬化樹脂の固有減衰能が35%以上であることが好ましい。この固有減衰能が35%未満であると、FRPとしたときに十分な制振性が得られない傾向にある。

【0039】

本発明において、固有減衰能は次のようにして測定したものをいう。

硬化した樹脂板から150mm長×12.5mm巾×0.9mm厚の試験片を切り出し、一端より30mmを片持固定し、高さ50cmから35gのおもりを先端部に落下打撃させて生じる振動減衰挙動を同試験片の片持固定した一端から50mmのところに取り付けた歪みゲージにより電気信号に変換し測定する。得られた減衰波形より、下式に基づき固有減衰能を求める。

【0040】

$$= 1 / n \cdot \ln(A_0 / A_n)$$

A_0 ：衝撃直後の振幅の大きさ

A_n ：衝撃後のn番目の振幅の大きさ

$$S.D.C. (\%) = (1 - e^{-2}) \times 100$$

【0041】

【実施例】

以下の実施例により本発明を更に詳しく説明する。実施例、比較例中の化合物の略語、および試験方法は以下の通りである。

【0042】

アクリルゴム粒子：粒径：0.2μm

E P 8 2 8 ; エピコート828 ビスフェノールA型エポキシ樹脂（油化シェルエポキシ株式会社製）

E P 8 0 7 : エピコート807 ビスフェノールF型エポキシ樹脂（油化シェルエポキシ株式会社製）

【0043】

B P A 3 2 8 ; 架橋構造を有するアクリルゴムとビスフェノールA型液状エポキシ樹脂との反応物。推定ゴム含有量=20%（（株）日本触媒）

P G - 2 0 7 : ポリプロピレングリコールジグリシジルエーテル（東都化成株式会社製）

【0044】

P T - 2 P G : 長鎖2塩基酸グリシジルエステル（岡本製油株式会社製）

Y H - 3 0 0 : エポトートY H - 3 0 0 三官能脂肪族ポリグリシジルエーテル（東都化成株式会社製）

【0045】

T H P E : テトラヒドロ無水フタル酸

E T - 1 0 0 : エタキュア-100（エチルコーポレーション）

【0046】

X N - 1 0 4 5 : 酸無水物系硬化剤（C i b a G e i g y 社製）

2 E 4 M Z : 2-エチル-4-メチルイミダゾール（四国化成工業）

【0047】

(TMA-Tg)

各組成のエポキシ樹脂組成物を120 × 1時間の条件で硬化して硬化樹脂板を得た。この樹脂板から試験片を切り出し、TAインスツルメント製 943 TMAを用いて、エクスパンジョンモード（荷重1g）、昇温速度10 / 分の条件でTMA-Tgを測定した。

【0048】

(R T M成形評価)

あらかじめCFスリープを配置した円筒系型を120に加熱した後、後述の方法で調整

10

20

30

40

50

したエポキシ樹脂組成物を注入した。1時間後に成形物を取り出し、成形物の表面状態および炭素繊維織布に直角に切断、研磨した断面を観察した。

【0049】

良好：表面が平滑であり、断面の顕微鏡観察において、アクリルゴムが均一に分散しており、層間にボイドもクラックも見られない。

【0050】

不良：表面にピンホールがあり、断面の顕微鏡観察において、層間にボイドやクラックが観察される。

【0051】

(制振性測定)

10

固有減衰能(S.D.C.)は次のようにして測定した。

硬化した樹脂板から150mm長×12.5mm巾×0.9mm厚の試験片を切り出し、一端より30mmをつかんで片持固定し、高さ50cmから35gのおもりを先端部に落下打撃させて生じる振動減衰挙動を同試験片の片持固定した一端から50mm(つかみ部から20mm)のところに長手方向に取り付けた歪みゲージにより電気信号に変換し測定した。得られた減衰波形より、下式にもとづき固有減衰能を求めた。

【0052】

$$= 1 / n \cdot \ln(A_0 / A_n)$$

A_0 ：衝撃直後の振幅の大きさ

A_n ：衝撃後のn番目の振幅の大きさ

20

$$S.D.C. (\%) = (1 - e^{-2}) \times 100$$

【0053】

(FRPの3点曲げ試験)

各組成のエポキシ樹脂組成物を三菱レイヨン株式会社の炭素繊維TR-40、フィラメント数3000本を経緯とも12.5本/インチで製織した目付け200g/m²の炭素繊維織布のクロスTR3110に含浸し、あらかじめ120℃に加熱したプレス機で圧力：1kgf/cm²、時間：1時間で硬化成形してFRP板(炭素繊維の体積含有率40体積%)を得た。このFRP板から試験片を切り出し、ASTM D790-81に準拠する3点曲げ試験を行った。

【0054】

30

(実施例1～22、比較例1～6)

(A)、(B)、(C)および(D)を表1に示した組成でそれぞれ(A)と(C)を均一に混合したものに(B)および(D)を加え均一に混合した。

【0055】

こうして得たエポキシ樹脂組成物の30℃における粘度、RTM成形性、S.D.C.、FRP3点曲げの強度、弾性率およびTMA-Tgを評価し、表1および2に示した。

【0056】

【表1】

	実施例																					
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22
(A) TPE + 電子樹脂	15	10	10	10	2	5	5	7	7	7	8	6	4	2								
(B) PC-207 ST-2PG WB900	40	40	60	80	40	60	80	40	60	80	80	80	80	80	80	80	80	80	90	40	60	80
(C) EP828 EP807	45	50	30	10	58	35	15	53	33	13	12	14	16	18								
(A) BPA228 + BPF307																						
(C)																						
(D) TPE 2E4M ET-100 RN-1045	60	60	55	50	1	1	2.5	2.0	2.0	2.5	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
接觸強度 (ボウズ)	8.7	6.3	4.5	3.4	5.4	3.3	2.9	3.0	2.7	2.6	4.2	3.9	3.5	3.3	5.9	3.1	2.7	2.7	2.6	2.9	2.6	2.4
RTM成形性評価	良好																					
S.D.C.(%)	37.5	36.3	36.7	41.2	35.2	36.7	42.2	36.8	37.8	43.0	38.9	37.5	43.0	42.6	45.9	42.5	37.0	34.7	47.2	44.1	37.8	35.5
GFR3点曲げ 強度(kgf/mm ²)	44.6	49.0	47.3	44.8	49.3	47.1	46.7	49.2	46.2	51.7	51.1	54.0	53.9	51.1	47.8	49.4	47.3	49.0	47.7	47.3	45.9	
弾性率(tanδ/mm ²)	2.82	2.85	2.82	2.67	2.86	2.75	2.81	2.86	2.84	2.71	2.75	2.63	2.73	2.83	2.83	2.83	2.83	2.76	2.84	2.94	2.87	2.74
TMA-Tg(°C)	88	100	89	90	108	95	87	104	97	93	97	103	105	103	116	107	98	89	123	112	102	97

【0057】

【表2】

		比較例					
		1	2	3	4	5	6
(A)	アリゴ TM 粒子	10	20	2		7	7
(B)	PG-207 ST-2PG YH300	30	40	95	100	40	40
(C)	Ep828 Ep807	60	50	3		53	53
(D)	MNA 2E4MZ XN-1045	80 1	70 1	70 1	80 1	30	100
樹脂粘度 (ポイズ)		8.5	12.4	2.8	3.1	5.3	3.6
RTM成形性		良好	不良	良好	良好	良好	不良
S.D.C. (%)		31.5	43.5	測定不能	39.2	硬化せず	測定不能
CFRP 3点曲げ強度(kgf/mm ²)		54.7	51.9	弹性体破断せず	46.3		53.6
弾性率(ton/mm ²)		2.83	2.82		2.80		2.91
TMA-Tg (°C)		121	100	室温以下	65		122

【0058】

【発明の効果】

本発明のエポキシ樹脂組成物は、低粘度で硬化性に優れ、粘度の安定性にも優れ、制振性能、機械的強度および耐熱性に優れる、複合材料に適したエポキシ樹脂組成物である。

10

20

30

フロントページの続き

(56)参考文献 特開平08-251881(JP,A)
特開平07-001651(JP,A)
特開平02-150484(JP,A)
特開平05-295237(JP,A)
特開平06-107908(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08L 63/00-63/10

C08G 59/00-59/72

C08L 21/00-21/02