

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4145541号
(P4145541)

(45) 発行日 平成20年9月3日(2008.9.3)

(24) 登録日 平成20年6月27日(2008.6.27)

(51) Int.Cl.		F I	
CO8L 77/06	(2006.01)	CO8L 77/06	
CO8J 3/22	(2006.01)	CO8J 3/22	CEQ
CO8K 3/04	(2006.01)	CO8K 3/04	
CO8L 53/02	(2006.01)	CO8L 53/02	
CO8L 71/12	(2006.01)	CO8L 71/12	

請求項の数 6 (全 10 頁)

(21) 出願番号	特願2002-80441 (P2002-80441)	(73) 特許権者	303046314
(22) 出願日	平成14年3月22日(2002.3.22)		旭化成ケミカルズ株式会社
(65) 公開番号	特開2003-277607 (P2003-277607A)		東京都千代田区神田神保町一丁目105番地
(43) 公開日	平成15年10月2日(2003.10.2)	(73) 特許権者	000003207
審査請求日	平成17年1月14日(2005.1.14)		トヨタ自動車株式会社
			愛知県豊田市トヨタ町1番地
		(74) 代理人	100108693
			弁理士 鳴井 義夫
		(74) 代理人	100068238
			弁理士 清水 猛
		(74) 代理人	100095902
			弁理士 伊藤 稜
		(74) 代理人	100103436
			弁理士 武井 英夫

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 自動車外装用熱可塑性樹脂組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

(A) 蟻酸相対粘度3.7以下のポリアミド6,6、(B) ポリフェニレンエーテル、(C) ABA型水素添加芳香族ビニル-共役ジエン化合物ブロック共重合体及び(D) 導電性カーボンブラックマスターバッチを含む混合物を熔融混練してなる樹脂組成物であり、(D) 導電性カーボンブラックマスターバッチが、a. 蟻酸相対粘度3.7以下のポリアミド6,6、b. ABA型水素添加芳香族ビニル-共役ジエン化合物ブロック共重合体、c. 導電性カーボンブラックからなることを特徴とする自動車外装用熱可塑性樹脂組成物。

【請求項2】

熔融混練してなる樹脂組成物が、(A) 蟻酸相対粘度3.7以下のポリアミド6,6(50~95重量部)、(B) ポリフェニレンエーテル(5~50重量部)、(C) ABA型水素添加芳香族ビニル-共役ジエン化合物ブロック共重合体((A)+(B)100重量部に対し5~30重量部)及び(D) 導電性カーボンブラック((A)+(B)100重量部に対し1~4重量部)の割合である請求項1に記載の樹脂組成物。

【請求項3】

(D) 導電性カーボンブラックマスターバッチがa. 蟻酸相対粘度3.7以下のポリアミド6,6(a+b100重量部中10~49重量部)、b. ABA型水素添加芳香族ビニル-共役ジエン化合物ブロック共重合体(a+b100重量部中51~90重量部)、c. 導電性カーボンブラック(マスターバッチ中8~15重量%)の割合からなる請求項

1 又は請求項 2 に記載の樹脂組成物。

【請求項 4】

(A) 蟻酸相対粘度 3.7 以下のポリアミド 6, 6、(B) ポリフェニレンエーテル、(C) ABA 型水素添加芳香族ビニル - 共役ジエン化合物ブロック共重合体及び (D) 導電性カーボンブラックマスターバッチを含む混合物を溶融混練してなる樹脂組成物の製造方法であって、(D) 導電性カーボンブラックマスターバッチが、a. 蟻酸相対粘度 3.7 以下のポリアミド 6, 6、b. ABA 型水素添加芳香族ビニル - 共役ジエン化合物ブロック共重合体、c. 導電性カーボンブラックからなることを特徴とする自動車外装用熱可塑性樹脂組成物の製造方法。

【請求項 5】

溶融混練してなる樹脂組成物が、(A) 蟻酸相対粘度 3.7 以下のポリアミド 6, 6 (50 ~ 95 重量部)、(B) ポリフェニレンエーテル (5 ~ 50 重量部)、(C) ABA 型水素添加芳香族ビニル - 共役ジエン化合物ブロック共重合体 ((A) + (B) 100 重量部に対し 5 ~ 30 重量部) 及び (D) 導電性カーボンブラック ((A) + (B) 100 重量部に対し 1 ~ 4 重量部) の割合である請求項 4 に記載の樹脂組成物の製造方法。

【請求項 6】

(D) 導電性カーボンブラックマスターバッチが a. 蟻酸相対粘度 3.7 以下のポリアミド 6, 6 (a + b 100 重量部中 10 ~ 49 重量部)、b. ABA 型水素添加芳香族ビニル - 共役ジエン化合物ブロック共重合体 (a + b 100 重量部中 51 ~ 90 重量部)、c. 導電性カーボンブラック (マスターバッチ中 8 ~ 15 重量%) の割合からなる請求項 4 又は請求項 5 に記載の樹脂組成物の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、自動車外装用に好適に使用される導電性カーボンブラックを含有するポリアミド - ポリフェニレンエーテル系熱可塑性樹脂の組成物に関する。

【0002】

【従来の技術】

近年、環境意識の高まりを背景として、自動車の軽量化のために自動車外装材料を樹脂化しようという検討が行われている。

熱可塑性樹脂を自動車外装用に使用する為には、静電塗装可能な材料にすることが必要である。その為には、樹脂に導電性カーボンブラックなどの導電性フィラーを添加する試みが行われている。しかしながら、導電性カーボンブラックを樹脂に添加すると樹脂の特性を大きく損なう為少量の導電性カーボンブラックの添加で導電性を発現させる工夫が必要とされている。例えば、特開平 2 - 201811 号公報には、予めカーボンブラックをポリアミドとのマスターバッチにしておく方法が知られている。

しかしながら、従来の技術では、成形された自動車樹脂フェンダーを静電塗装した場合、場所により塗膜厚みが異なること、また成形時のゲート付近のフローマークが大きいこと更には引張り伸びが不十分であることが依然として課題として残されていた。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、自動車外装用に適した樹脂、即ち、静電塗装時の塗膜厚みのばらつきが少なく、成形時のフローマークが小さく、更に引張り伸びが高い熱可塑性樹脂組成物を提供するものである。

【0004】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記課題を解決するため検討を重ねた結果、特定の組成からなる導電性カーボンブラックマスターバッチを利用してポリアミド - ポリフェニレンエーテル系樹脂を製造することにより上記課題が解決されることを見出した。

10

20

30

40

50

即ち本発明は、

1. (A) 蟻酸相対粘度 3.7 以下のポリアミド 6, 6、(B) ポリフェニレンエーテル、(C) A B A B 型水素添加芳香族ビニル - 共役ジエン化合物ブロック共重合体及び (D) 導電性カーボンブラックマスターバッチを含む混合物を熔融混練してなる樹脂組成物であり、(D) 導電性カーボンブラックマスターバッチが、a. 蟻酸相対粘度 3.7 以下のポリアミド 6, 6、b. A B A B 型水素添加芳香族ビニル - 共役ジエン化合物ブロック共重合体、c. 導電性カーボンブラックからなることを特徴とする自動車外装用熱可塑性樹脂組成物。

2. 熔融混練してなる樹脂組成物が、(A) 蟻酸相対粘度 3.7 以下のポリアミド 6, 6 (50 ~ 95 重量部)、(B) ポリフェニレンエーテル (5 ~ 50 重量部)、(C) A B A B 型水素添加芳香族ビニル - 共役ジエン化合物ブロック共重合体 ((A) + (B) 100 重量部に対し 5 ~ 30 重量部) 及び (D) 導電性カーボンブラック ((A) + (B) 100 重量部に対し 1 ~ 4 重量部) の割合である上記 1 に記載の樹脂組成物。

3. (D) 導電性カーボンブラックマスターバッチが a. 蟻酸相対粘度 3.7 以下のポリアミド 6, 6 (a + b 100 重量部中 10 ~ 49 重量部)、b. A B A B 型水素添加芳香族ビニル - 共役ジエン化合物ブロック共重合体 (a + b 100 重量部中 51 ~ 90 重量部)、c. 導電性カーボンブラック (マスターバッチ中 8 ~ 15 重量%) の割合からなる上記 1 又は上記 2 に記載の樹脂組成物。

4. (A) 蟻酸相対粘度 3.7 以下のポリアミド 6, 6、(B) ポリフェニレンエーテル、(C) A B A B 型水素添加芳香族ビニル - 共役ジエン化合物ブロック共重合体及び (D) 導電性カーボンブラックマスターバッチを含む混合物を熔融混練してなる樹脂組成物の製造方法であって、(D) 導電性カーボンブラックマスターバッチが、a. 蟻酸相対粘度 3.7 以下のポリアミド 6, 6、b. A B A B 型水素添加芳香族ビニル - 共役ジエン化合物ブロック共重合体、c. 導電性カーボンブラックからなることを特徴とする自動車外装用熱可塑性樹脂組成物の製造方法。

5. 熔融混練してなる樹脂組成物が、(A) 蟻酸相対粘度 3.7 以下のポリアミド 6, 6 (50 ~ 95 重量部)、(B) ポリフェニレンエーテル (5 ~ 50 重量部)、(C) A B A B 型水素添加芳香族ビニル - 共役ジエン化合物ブロック共重合体 ((A) + (B) 100 重量部に対し 5 ~ 30 重量部) 及び (D) 導電性カーボンブラック ((A) + (B) 100 重量部に対し 1 ~ 4 重量部) の割合である上記 4 に記載の樹脂組成物の製造方法。

6. (D) 導電性カーボンブラックマスターバッチが a. 蟻酸相対粘度 3.7 以下のポリアミド 6, 6 (a + b 100 重量部中 10 ~ 49 重量部)、b. A B A B 型水素添加芳香族ビニル - 共役ジエン化合物ブロック共重合体 (a + b 100 重量部中 51 ~ 90 重量部)、c. 導電性カーボンブラック (マスターバッチ中 8 ~ 15 重量%) の割合からなる上記 4 又は上記 5 に記載の樹脂組成物の製造方法。

である。

【0005】

以下本発明について詳細に説明する。

本発明で使用することのできる (A) 及び a 成分のポリアミド 6, 6 は、ポリヘキサメチレンアジバジドである。

本発明でいうポリアミド 6, 6 の蟻酸相対粘度 (RV) は ASTM D 789 で測定されたものをいい、2 種類以上のポリアミド 6, 6 を併用使用した場合は、混合物の RV をいう。本発明で使用できるポリアミド 6, 6 の RV は 3.7 以下である。3.7 を超える RV だと本発明の目的とする静電塗装時の塗膜厚みの均一性は達成できない為である。好ましくは、2.0 ~ 3.5 である。

【0006】

本発明で使用できる (B) 成分のポリフェニレンエーテルとは、ポリ置換フェニレンエーテルである。具体的には、ポリ(2, 6 - ジメチル - 1, 4 - フェニレンエーテル)、ポリ(2 - メチル - 6 - エチル - 1, 4 - フェニレンエーテル)、ポリ(2 - メチル - 6 - フェニル - 1, 4 - フェニレンエーテル)、ポリ(2, 6 - ジクロロ - 1, 4 - フェニレ

10

20

30

40

50

ンエーテル)等のホモポリマーや2,6-ジメチルフェノールと他のフェノール類(例えば、2,3,6-トリメチルフェノールや2-メチル-6-ブチルフェノール)との共重合体のごときポリフェニレンエーテル共重合体も挙げられる。中でもポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンエーテル)が好ましい。

【0007】

本発明で用いるポリフェニレンエーテルの製造方法は、例えば、米国特許第3306874号明細書記載されているように第一塩化銅とアミンのコンプレックスを触媒として用い、2,6-ジメチルフェノールなどを酸化重合する方法などである。

本発明で使用するのことができるポリフェニレンエーテルの還元粘度(0.5g/dl、クロロホルム溶液、30測定)は、0.15~0.70dl/gの範囲であることが好ましく、さらに好ましくは0.20~0.60dl/gの範囲である。

10

【0008】

また、本発明で使用できるポリフェニレンエーテルは、ポリアミド6,6との相容性を改良するために変性されたポリフェニレンエーテルであっても構わない。

ここでいう変性されたポリフェニレンエーテルとは、分子構造内に少なくとも1個の炭素-炭素二重結合または、三重結合及び少なくとも1個のカルボン酸基、酸無水物基、アミノ基、水酸基、又はグリシジル基を有する、少なくとも1種の変性化合物で変性されたポリフェニレンエーテルを指す。

変性化合物の好ましい化合物は、マレイン酸、フマル酸、クロロマレイン酸、シス-4-シクロヘキセン-1,2-ジカルボン酸及びこれらの酸無水物などである。特にフマル酸、無水マレイン酸が好ましい。

20

【0009】

該変性されたポリフェニレンエーテルの製法としては、ラジカル開始剤の存在下、非存在下でポリフェニレンエーテルのガラス転移温度以上360以下の範囲の温度で変性化合物と溶融混練し反応させる方法などの製法が使用できる。

変性されたポリフェニレンエーテルの変性化合物の付加量は、ポリフェニレンエーテル100重量部に対して0.1~5重量部が好ましく、更に好ましくは0.3~3重量部である。

本発明の溶融混練してなる樹脂組成物におけるポリアミド6,6とポリフェニレンエーテルの好ましい組成は、本発明目的の組成物を得る為に、ポリアミド6,6(50~95重量部)、ポリフェニレンエーテル(5~50重量部)である。更に好ましくは、ポリアミド6,6(60~80重量部)、ポリフェニレンエーテル(20~40重量部)である。

30

【0010】

本発明で使用できる(c)及びb成分のA B A B型水素添加芳香族ビニル-共役ジエン化合物ブロック共重合体とは、芳香族ビニルブロックAと共役ジエンブロックBがA B A B型で結合しており、共役ジエンブロックが水素添加されたものである。

芳香族ビニル化合物の具体例としてはスチレン、-メチルスチレン、ビニルトルエン等が挙げられ、これらから選ばれた1種以上の化合物が用いられるが、中でもスチレンが特に好ましい。

共役ジエン化合物の具体例としては、ブタジエン、イソプレン、ピペリレン、1,3-ペンタジエン等が挙げられ、これらから選ばれた1種以上の化合物が用いられるが、中でもブタジエン、イソプレンおよびこれらの組み合わせが好ましい。

40

【0011】

また、芳香族ビニルと共役ジエン化合物のブロック共重合体の水素添加物とは、ジエン化合物を主体とする重合体ブロックの脂肪族二重結合を水素添加したものをいう。

また、ブロック共重合体中の芳香族ビニル化合物の含有量は20~45重量%が好ましい。

また、分子量としては、昭和電工製GPC装置[SYSTEM 21]で、クロロホルムを溶媒とし、40、ポリスチレンスタンダードで測定した数平均分子量(Mn)が、10,000~500,000のものが好ましく、40,000~250,000のものが最

50

も好ましい。

【0012】

本発明の溶融混練してなる樹脂組成物におけるA B A B型水素添加芳香族ビニル - 共役ジエン化合物ブロック共重合体の好ましい割合は、ポリアミド6, 6及びポリフェニレンエーテル100重量部に対し、5~30重量部である。更に好ましくは、10~20重量部である。

本発明の(D)成分の導電性カーボンブラックマスターバッチは、a. 蟻酸相対粘度3.7以下のポリアミド6, 6、b. A B A B型水素添加芳香族ビニル - 共役ジエン化合物ブロック共重合体及びc. 導電性カーボンブラックからなる。

a及びb成分については、前記で説明した通りである。

c成分の導電性カーボンブラックとは、DBP吸油量が300ml/100g以上のポラスで一次粒子径が50nm以下のカーボンブラックである。好ましくはDBP吸油量が400ml/100g以上のカーボンブラックである。

【0013】

導電性カーボンブラックマスターバッチの好ましい組成は、a. 蟻酸相対粘度3.7以下のポリアミド6, 6(a+b100重量部中10~49重量部)、b. A B A B型水素添加芳香族ビニル - 共役ジエン化合物ブロック共重合体(a+b100重量部中51~90重量部)、c. 導電性カーボンブラック(マスターバッチ中8~15重量%)である。

本発明における導電性カーボンブラックマスターバッチは、例えば、上流側供給口と下流側供給口を備えた二軸押出機において、上流側供給口よりaとbを供給し、下流側供給口からcを供給して製造することができる。好ましいバレル設定温度は260~360であり、好ましいスクリュウ回転数は150~900rpmである。

【0014】

本発明におけるA B A B型水素添加芳香族ビニル - 共役ジエン化合物ブロック共重合体(C)及びbは同一のものであっても異なっても良いし、蟻酸相対粘度3.7以下のポリアミド6, 6(A)及びaも同一のものであっても異なってもよい。

本発明における溶融混練してなる樹脂組成物の好ましい割合は(A)蟻酸相対粘度3.7以下のポリアミド6, 6(50~95重量部)、(B)ポリフェニレンエーテル(5~50重量部)、(C)A B A B型水素添加芳香族ビニル - 共役ジエン化合物ブロック共重合体((A)+(B)100重量部に対し5~30重量部)及び(D)導電性カーボンブラック((A)+(B)100重量部に対し1~4重量部)のである。

【0015】

本発明中で用いることのできる付加的添加成分としては、ポリエステル、ポリオレフィン等の他の熱可塑性樹脂、無機充填材(タルク、カオリン、ゾノトライト、ワラストナイト、酸化チタン、チタン酸カリウム、炭素繊維、ガラス繊維、着色用カーボンブラックなど)、無機充填材と樹脂との親和性を高める為の公知のシランカップリング剤、難燃剤(ハロゲン化された樹脂、シリコン系難燃剤、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、有機リン酸エステル化合物、ポリリン酸アンモニウム、赤燐など)、滴下防止効果を示すフッ素系ポリマ - 、離型剤(オイル、低分子量ポリオレフィン、ポリエチレングリコール、ジ脂肪酸アミド、脂肪酸金属塩、脂肪酸エステル類、アルキルスルホン酸塩等)及び、三酸化アンチモン等の難燃助剤、酸化亜鉛、硫化亜鉛、酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤等である。

これらの成分は、本発明組成物100重量部に対して、本発明目的を損なわない範囲で0.1~20重量部程度添加することが可能である。

【0016】

本発明の溶融混練してなる組成物を得るための具体的な溶融混練加工機械としては、例えば、単軸押出機、二軸押出機、ロール、ニーダー、ブラベンダープラストグラフ、パンバリ - ミキサー等が挙げられるが、中でも二軸押出機が好ましく、特に、上流側供給口と1カ所以上の下流側供給口を備えた二軸押出機が最も好ましい。好ましいスクリュウ径は、40~95mmである。

この際のパレル設定温度は、ポリアミドの融点以上の温度に設定されるが、260～360の中から好適な組成物が得られる条件を任意に選ぶことができる。

またスクリュウ回転数は、150～900rpmが好ましい。

【0017】

好ましい無次元押出量は、0.0025～0.020である。無次元押出量は次式によって計算することができる

無次元押出量 = 押出量 [m³ / h] /

((スクリュウ直径 [m])³ × 120 × 3.14 × スクリュウ回転数 [rpm])

このようにして得られる本発明の熱可塑性樹脂組成物は、射出成形により自動車外装用部材に成形され実用に供される。

10

【0018】

本発明の組成物は、自動車外装用に使用することができる。例えば、フロントフェンダー、ドアパネル、リアパネル、ロッカーパネル、リアエアスポイラー、バックドアガーニッシュ、エンブレムガーニッシュ、燃料注入口パネル、オーバーフェンダー、アウトドアハンドル、ドアミラーハウジング、ボンネットエアインテーク、バンパーガード、ルーフレール、ルーフレールレッグ、ピラーカバー、ホイールカバー、各種エアロパーツ等に好適に使用することができる。

【0019】

【発明の実施の形態】

以下、実施例及び比較例により、本発明を更に詳細に説明する。

20

(使用した原料)

(1-1) ポリアミド6,6

RV = 20

(1-2) ポリアミド6,6

RV = 37

(1H-1) ポリアミド6,6

RV = 40

(2-1) 無水マレイン酸が0.5重量%付加されたポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンエーテル)

還元粘度(0.5g/dl、クロロホルム溶液、30測定) = 0.42

30

(3-1) ABA型水素添加スチレン-ブタジエンブロック共重合体

スチレン含有量 = 30重量%

数平均分子量 = 200,000

(4-1) ライオン社製 ケッチェンブラックEC 600JD

DBP吸油量 = 495ml / 100g

(5-1) 酸化防止剤: チバ・スペシャリティケミカルズ製 I R G A N O X

1010

(5-2) 離型剤: エチレンビスステアリルアミド

【0020】

尚、以下では、使用した原料名を上記(1-1)～(5-2)の各記号で表す。

40

導電性カーボンブラックマスターバッチの製造

上流側に1カ所と、押出機中央部に1カ所の供給口を有する二軸押出機[ZSK-40: ウェルナー&フライデラー社製]のシリンダー温度を300～320、スクリュウ回転数を300rpmに設定し、上流側供給口より、(1-1)及び(3-1)を供給し、押出機中央部供給口より(4-1)及び(5-1)を供給し、溶融混練後ペレット化した。こうして得た導電性マスターバッチMB-1～3の組成を表1に示す。

【0021】

【表1】

表 1

	組成			
	1-1	3-1	4-1	5-1
単位	重量部			
MB-1	40	60	11	0.3
MB-2	100		11	0.3
MB-3		100	11	0.3

10

【0022】

(実施例1~2)、(比較例1~3)

上流側に1カ所と、押出機中央部に1カ所の供給口を有する二軸押出機[ZSK-40: ウェルナー&フライデラー社製]のシリンダー温度を280~320、スクリュウ回転数を300rpmに設定し、上流側供給口より表2に示す組成で供給し、熔融混練後、ペレット化した。ペレット100重量部に対し(5-2)を0.3重量部をブレンドし添着させた。

20

【0023】

次に、シリンダー温度290、金型温度80に設定した射出成形機[IS-80EPN: 東芝機械(株)製]を用いて、成形サイクル40秒で、150×150×3mmの平板(2点ゲート)を成形した。この平板のゲート付近のフローマークの状態を評価した(フローマークの発生した範囲をゲートからの距離で表した3段階評価を行った; 1cm以上、1cm未満0.5cm以上、0.5cm未満)。次に同成形機でASTM D638に従う引張り試験片を成形し、引張り破断伸びを測定した。さらに自動車フェンダーを成形しそれを接地した。この自動車フェンダーに、自動車外装用ポリエステル-メラミン系塗料を-70~-90KVに帯電させて静電塗装を施し焼付けを行った。次に、決められた4箇所を切断し顕微鏡で膜厚を測定した。こうして測定された4点の膜厚の最大値と

30

それらの結果を表2に示す。

【0024】

【表2】

表2

	組成										評価結果			
	1-1	1-2	1H-1	2-1	3-1	MB-1	MB-2	MB-3	フローマークの範囲	塗膜厚みのばらつき	引張り破断のび			
単位									-	μ	%			
実施例 1	64			30	7	16			0.5cm未満	7	40			
実施例 2		64		30	7	16			0.5cm未満	9	39			
比較例 1	56			30	16		16		1cm以上	16	23			
比較例 2	70			30	1			16	1未満0.5cm以上	22	20			
比較例 3			64	30	7	16			1cm以上	15	40			

10

20

30

40

【0025】

【発明の効果】

本発明は、特定の導電性カーボンブラックマスターバッチを使用して熔融混練したポリアミド-ポリフェニレンエーテル系樹脂に関するものであり、それによって、静電塗装時の

50

塗膜厚みの均一性に優れ、成形時のフローマークが少なく更に引張り伸びが高い自動車外装用樹脂組成物を提供することができるものである。

フロントページの続き

- (72)発明者 二井野 雅彦
千葉県袖ケ浦市中袖5番地1 旭化成株式会社内
- (72)発明者 関藤 武士
愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内
- (72)発明者 安永 賢一
愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

審査官 堀 洋樹

- (56)参考文献 国際公開第01/081473(WO, A1)
特開平06-306278(JP, A)
特開平06-313045(JP, A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
- | | |
|------|-------------|
| C08L | 1/00-101/14 |
| C08K | 3/00-13/08 |
| C08J | 3/00-3/28 |