

混炼工艺对白炭黑硅烷偶联反应程度及胶料性能的影响

赵晓东,董康,刘文国,陈亚婷,王鹭飞,黄义钢,王君

(青岛双星轮胎工业有限公司,山东青岛 266400)

摘要:研究混炼工艺对白炭黑硅烷偶联反应程度及胶料性能的影响。结果表明:随着白炭黑硅烷偶联反应程度的增大,胶料的门尼焦烧时间延长,硫化速度加快,小应变下的模量减小,Payne效应降低,填料与填料之间的相互作用减弱,70℃时的损耗因子明显减小,白炭黑在胶料中的分散均匀性提高;白炭黑硅烷偶联反应程度对混炼温度的敏感度较高,混炼温度对硅烷偶联反应程度的影响大于混炼时间的影响;当混炼温度为140~145℃、混炼时间为100~180s时,胶料的物理性能最佳。通过计算白炭黑硅烷偶联反应的表现活化能,得到大配合试验胶料混炼工艺的最佳混炼时间。

关键词:混炼工艺;白炭黑;硅烷偶联反应程度;加工性能;物理性能;动态力学性能

中图分类号:TQ330.38⁺3

文献标志码:A

文章编号:1006-8171(2023)07-0424-07

DOI:10.12135/j.issn.1006-8171.2023.07.0424



OSID开放科学标识码
(扫码与作者交流)

自欧盟新标签法实施以来,人们对于高性能绿色轮胎的需求越来越大,使白炭黑在轮胎中的应用成为一种趋势。相比传统补强填料,白炭黑在降低轮胎滚动阻力和提高抗湿滑性能方面都具有显著效果。近年来,人们对白炭黑在胶料中的作用机理进行了大量研究^[1-3]。王梦蛟等^[4]对白炭黑-橡胶作用力做了系统分析,阐述了典型的“水膜挤出区、过渡区和牵引区”三区理论,白炭黑的刺破水膜作用在以水膜挤出区为主的轿车轮胎中发挥了优异的抗湿滑效果。王元霞^[5]提出白炭黑的微观硬度和胶料的微观粗糙度是白炭黑具有抗湿滑性能的本质。然而,白炭黑表面的强极性使其很难与非极性橡胶相容,从而影响其在胶料中的分散性,限制了白炭黑的应用。近年来出现了多种含乙氧基、巯基或辛酰基的有机硅烷偶联剂,它们对白炭黑分散性的改善效果显著,但有关其偶联反应程度与反应条件的研究极少,使得硅烷偶联剂和白炭黑都不能充分发挥其功效。因此,研究白炭黑胶料的混炼工艺对硅烷偶联反应程度

的影响显得尤为重要^[6-7]。

本工作研究混炼工艺对白炭黑硅烷偶联反应程度及胶料性能的影响,为白炭黑在胶料中的实际应用提供参考。

1 实验

1.1 主要原材料

溶聚丁苯橡胶(SSBR),牌号SOL5251H,非充油型,锦湖石化有限公司产品;顺丁橡胶(BR),牌号9000,中国石化北京燕山石化公司产品;高分散性白炭黑,牌号1165MP,CTAB比表面积为160 m²·g⁻¹,索尔维罗地亚公司产品;液体硅烷偶联剂Si75,南京曙光化工集团有限公司产品。

1.2 试验配方

试验配方(用量/份)如下:SSBR 80,BR 20,白炭黑 80,硅烷偶联剂Si75 6.4,氧化锌 3,硬脂酸 2,防老剂RD 2,环保油 37.5,硫黄 1.5,促进剂DPG 1.5,促进剂CBS 2。

1.3 主要设备和仪器

BL-6175-AL型开炼机,宝轮精密检测仪器有限公司产品;BB-1600型密炼机,日本神户制钢株式会社产品;IM320E啮合型串联密炼机,德国HF公司产品;5965型电子万能材料试验机,美国

作者简介:赵晓东(1993—),男,山东青岛人,青岛双星轮胎工业有限公司工程师,硕士,主要从事轮胎橡胶材料研究及配方开发工作。

E-mail:zhaoxiaodong@doublestar.com.cn

Instron公司产品;PREMIER MDR型无转子橡胶硫化仪、PREMIER MV型门尼粘度仪和RPA2000橡胶加工分析(RPA)仪,美国阿尔法科技有限公司产品;EPLEXOR 500N型动态热机械分析(DMA)仪,德国耐驰仪器制造有限公司产品。

1.4 混炼工艺

胶料采用两段混炼工艺,均在BB-1600型密

炼机中进行。一段混炼转子转速为 $90 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$,混炼工艺为:生胶→压压砣,混炼30 s→加白炭黑、环保油、小料和硅烷偶联剂Si75→压压砣30 s→提压砣,清扫→压压砣,恒温混炼($145 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 恒温混炼180 s,调整不同温度及反应时间验证最佳反应条件,按表1所示混炼条件制备)→排胶($145 \text{ }^{\circ}\text{C}$)→开炼机下片。二段混炼加硫黄和促进剂。

表1 恒温混炼条件

项 目	胶料编号								
	L0 ¹⁾	L1	L2	L3	M1	M2	M3	H1	H2
混炼温度/ $^{\circ}\text{C}$	145	135	135	135	145	145	145	155	155
混炼时间/s	240	120	240	360	120	240	360	120	240

注:1)不加硅烷偶联剂。

1.5 性能测试

(1) 白炭黑硅烷偶联反应程度。采用RPA仪测试,条件为:应变范围 0.25%~25%,频率 1 Hz,温度范围 $60 \sim 160 \text{ }^{\circ}\text{C}$,以Payne效应作为理论基础,对一段混炼胶进行测试,通过4次应变扫描,加热促使未与硅烷偶联剂反应的白炭黑絮凝,以便进一步通过储能模量(G')来表征未参与反应的白炭黑的量,从而计算硅烷偶联反应程度^[8]。

(2) 加工性能。采用RPA仪测试,条件为:温度 $100 \text{ }^{\circ}\text{C}$,频率 0.1 Hz,应变范围 0~42%。

(3) 动态力学性能。温度扫描测试条件为:频率 10 Hz,应变 0.25%,温度范围 $-40 \sim 80 \text{ }^{\circ}\text{C}$,升温速率 $20 \text{ }^{\circ}\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$;应变扫描测试条件为:温度 $25 \text{ }^{\circ}\text{C}$,应变范围 0.2%~5%。

(4) 其他性能均按照相应的国家标准测试。

2 结果与讨论

2.1 胶料混炼

2.1.1 一段混炼胶的挤出形态

一段混炼胶的挤出形态如图1所示。

从图1可以看出:L0胶料表面麻面严重,整体偏硬,排胶过程散胶,不能形成块状,这是因为没有硅烷偶联剂的桥接,白炭黑与胶料很难相容,可以认定白炭黑硅烷偶联反应程度为0;低温条件($135 \text{ }^{\circ}\text{C}$)下,L1,L2和L3胶料反应缓和,随着混炼时间的延长,白炭黑硅烷偶联反应程度增大,胶料表面粗糙程度增大; $145 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 下,M1,M2和M3胶料随着混炼时间的延长,白炭黑硅烷偶联反应程度

增大,当混炼时间延长至360 s时,胶料麻面严重;高温条件($155 \text{ }^{\circ}\text{C}$)下,H1和H2胶料由于白炭黑硅烷偶联反应剧烈,胶料出现严重的麻面现象。

2.1.2 白炭黑硅烷偶联反应程度

混炼工艺对白炭黑硅烷偶联反应程度的影响如表2所示。

从表2可以看出:在同一混炼温度下,随着混炼时间的延长,白炭黑的硅烷偶联反应程度增大;当混炼温度足够高时,如H1和H2胶料在混炼过程中白炭黑硅烷偶联反应剧烈,在很短时间内即可反应完全,硅烷偶联反应程度很快达到峰值。在同一混炼时间下,提高混炼温度也能达到同样的效果。不难发现,L2与M1胶料、L3与M2胶料的白炭黑硅烷偶联反应程度在同一水平,说明混炼温度每升高 $10 \text{ }^{\circ}\text{C}$,可以缩短大约1半的反应时间。

白炭黑与硅烷偶联剂Si75的反应对于温度和时间都有很强的相关性,结合胶料形态,高温短时反应剧烈,胶料表面麻面严重,同时白炭黑硅烷偶联反应很快达到峰值;低温长时间混炼,白炭黑硅烷偶联反应才能完全,增大了加工过程中的能量成本。因此,白炭黑硅烷偶联反应适宜的混炼温度在 $140 \sim 145 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 之间,混炼时间在 $100 \sim 180 \text{ s}$ 之间。

2.2 胶料性能

2.2.1 门尼粘度和门尼焦烧时间

混炼工艺对胶料门尼粘度和门尼焦烧时间的影响如表3所示。

从表3可以看出:L0胶料的门尼粘度最大;在同一混炼温度下,随着混炼时间的延长,胶料的门

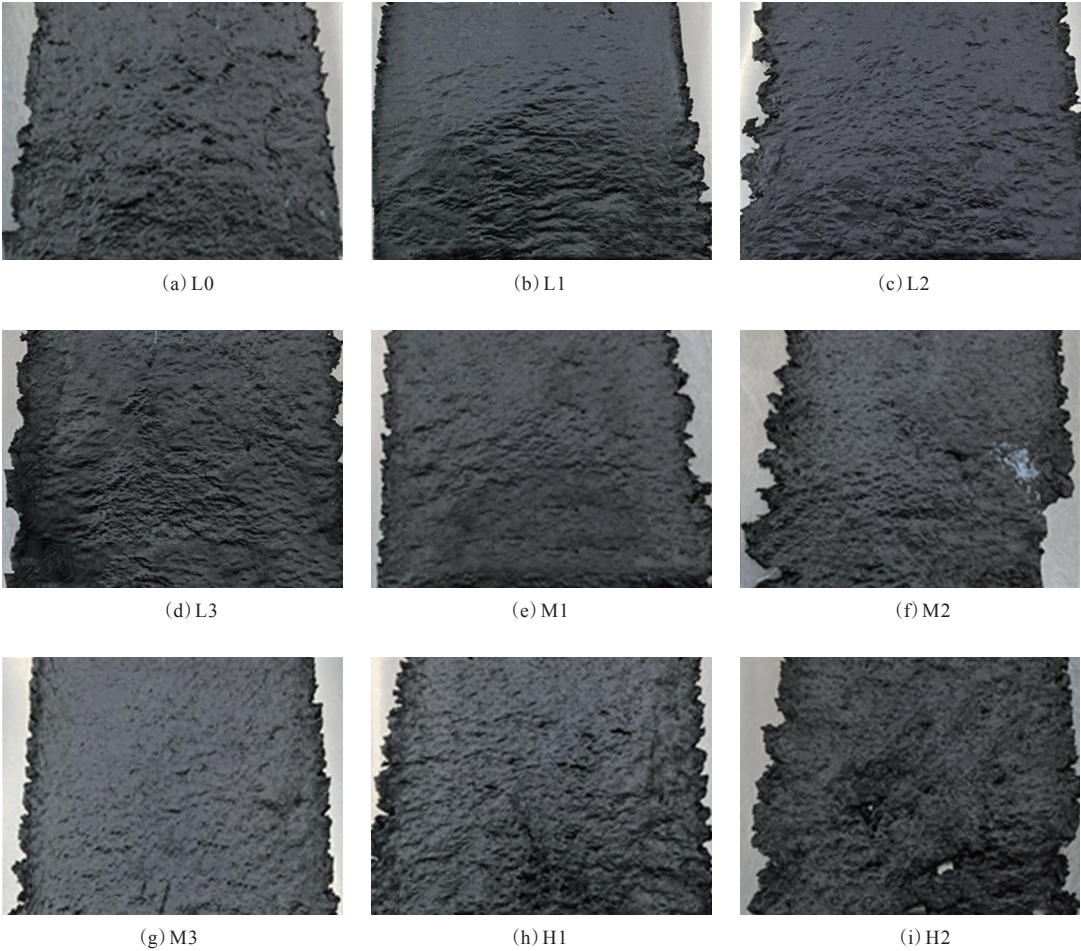


图1 一段混炼胶的挤出形态

表2 混炼工艺对白炭黑硅烷偶联反应程度的影响 %

胶料编号	硅烷偶联反应程度	胶料编号	硅烷偶联反应程度
L1	78	M2	89
L2	85	M3	93
L3	90	H1	93
M1	83	H2	92

尼粘度减小,这是因为混炼时间过长,胶料被转子打稀,分子链被打碎;在同一混炼时间下,提高混炼温度,胶料的转矩仍增大,表明混炼工艺对胶料门尼粘度的影响不是由白炭黑硅烷偶联反应程度造成的。

从表3还可以看出,L0胶料的门尼焦烧时间最短,这是由于体系中没有硅烷偶联剂,白炭黑团聚在一起引起的转矩增大,从而出现“假焦烧”现象^[9]。硅烷偶联反应越完全,白炭黑之间的絮凝和团聚现象就越少,引起的转矩变化趋势减小,因此,胶料的门尼焦烧时间随着白炭黑硅烷偶联反应程度的增大而延长。

2.2.2 硫化特性

混炼工艺对胶料硫化曲线的影响如图2所示。
混炼过程中没有与硅烷偶联剂反应的白炭黑在硫化过程中还会团聚在一起,如图2(a)和(b)所

表3 混炼工艺对胶料门尼粘度和门尼焦烧时间的影响

项 目	胶料编号								
	L0	L1	L2	L3	M1	M2	M3	H1	H2
门尼粘度[ML(1+4) 100 ℃]	121	73	69	67	74	73	70	78	80
门尼焦烧时间 t_5 (127 ℃)/min	26.5	45.0	49.4	55.1	46.6	53.7	55.8	54.4	57.1

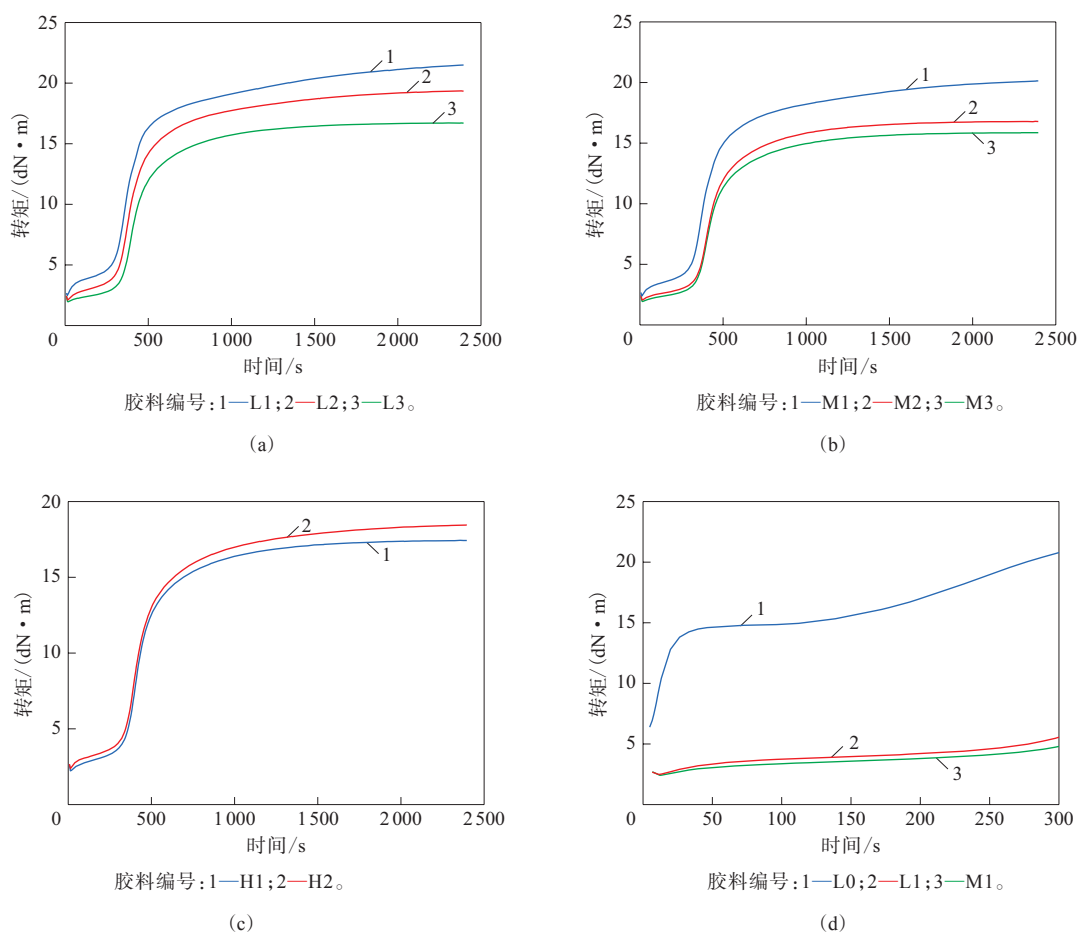


图2 混炼工艺对胶料硫化曲线(161 °C)的影响

示,在高温作用下,硫化初期白炭黑胶料的转矩会有小幅增大,白炭黑硅烷偶联反应程度越低,转矩增幅越大,如L1和M1胶料的曲线,在硫化前5 min有一个白炭黑絮凝导致的转矩变化,图2(d)中L0胶料的转矩变化更明显,进一步证明白炭黑硅烷偶联反应程度低的体系中存在白炭黑之间的相互作用力。在图2(a), (b)和(c)中也不难发现,白炭黑胶料的硫化曲线随硫化时间的延长呈持续上升的趋势,白炭黑硅烷偶联反应程度越低,胶料的 $F_{\max}$ 越大,这是由于白炭黑硫化反应不完全,填料与填料之间不断地絮凝导致胶料模量持续上升。同时可以看出,白炭黑硅烷偶联反应程度越大,胶料的硫化速度越快,这是因为硅烷偶联反应程度低的白炭黑表面吸附促进剂DPG,导致胶料的硫化速度变慢。

2.2.3 物理性能

混炼工艺对硫化胶物理性能的影响见表4。

从表4可以看出:随着白炭黑硅烷偶联反应程度的增大,硫化胶的硬度减小,10%和25%定伸应力逐渐减小,小应变更能反映填料之间的相互作用力;300%定伸应力与白炭黑硅烷偶联反应程度的相关性很小,这是由于大应变下模量主要由胶料的交联体系决定;硫化胶的强伸性能在白炭黑硅烷偶联反应程度为80%时已经可以满足要求;白炭黑硅烷偶联反应程度对硫化胶耐磨性能的影响不大。

2.3 加工性能

混炼工艺对胶料加工性能的影响见表5, $\Delta G'$ 为应变0.7%的 G' ($G_{0.7\%}'$) 与应变42%的 G' ($G_{42\%}'$) 之差。

从表5可以看出:随着白炭黑硅烷偶联反应程度的增大,胶料的Payne效应减弱,填料在胶料中的分散性提高;L0胶料的 $G_{0.7\%}'$ 明显大于其他胶料,此时填料之间的相互作用力最大,随着应变增大至42%时,白炭黑之间的团聚被拉开,其 G'

表4 混炼工艺对硫化胶物理性能的影响

项 目	胶料编号								
	L0	L1	L2	L3	M1	M2	M3	H1	H2
密度/(Mg·m ⁻³)	1.196	1.195	1.197	1.196	1.194	1.194	1.194	1.193	1.194
邵尔A型硬度/度	69	65	62	60	64	62	59	62	60
10%定伸应力/MPa	1.17	0.74	0.66	0.61	0.68	0.59	0.57	0.63	0.59
25%定伸应力/MPa	1.33	1.10	1.00	0.95	1.04	0.93	0.91	0.98	0.96
100%定伸应力/MPa	2.20	2.76	2.48	2.53	2.78	2.48	2.48	2.71	2.83
300%定伸应力/MPa	7.2	12.7	12.2	12.7	13.8	12.5	12.7	13.3	14.2
拉伸强度/MPa	12.9	17.9	15.6	18.7	14.5	15.2	15.6	16.4	18.6
拉断伸长率/%	506	398	356	407	318	344	342	354	374
撕裂强度/(kN·m ⁻¹)	45	40	37	37	36	39	39	37	38
回弹值/%	36.5	35.0	36.2	38.0	35.4	37.5	38.8	37.4	39.0
阿克隆磨耗量/cm ³	0.313	0.123	0.117	0.122	0.113	0.103	0.122	0.120	0.118
DIN磨耗指数/%	87	168	164	169	173	170	169	168	173

注:硫化条件为161℃×15 min。

表5 混炼工艺对胶料加工性能的影响

kPa

项 目	胶料编号								
	L0	L1	L2	L3	M1	M2	M3	H1	H2
$G_{0.7\%}'$	7 323	2 469	1 890	1 413	2 078	1 577	1 182	1 161	1 403
$G_{42\%}'$	612	403	401	399	414	419	405	348	439
$\Delta G'$	6 711	2 066	1 489	1 014	1 664	1 158	777	813	964

与其他胶料的差距减小,进一步证明在大应变下胶料的定伸应力不受白炭黑硅烷偶联反应程度的影响。

2.4 动态力学性能

混炼工艺对胶料动态力学性能的影响见表6, T_g 为玻璃化温度, E' 为弹性模量, E'' 为损耗模量, $\tan\delta$ 为损耗因子。

当白炭黑硅烷偶联反应程度为90%时,基本达到峰值,此时白炭黑在胶料中的分散性最佳。从表6可以看出:在不同混炼温度下,随着白炭黑硅烷偶联反应程度的增大,胶料的 E' , E'' 和70℃时的 $\tan\delta$ 减小;高温混炼使70℃时的 $\tan\delta$ 降幅更大;

而在保持混炼温度不变,延长混炼时间时,70℃时的 $\tan\delta$ 降幅不明显,并逐渐趋于平缓。因此,若想降低轮胎的滞后损失和滚动阻力,在混炼过程中适当提高混炼温度是行之有效的方法。

以上研究表明,在不同混炼工艺下制备的胶料的物理性能与小应变下的模量有很强的相关性,因此,在拉伸应变为0.2%~5%下进行扫描,胶料的DMA曲线如图3所示。

从图3可以看出:M2和M3胶料的滞后损失已达到最低水平;高温条件下,H1和H2胶料应存在剧烈反应导致的交联键产生,从表5也可以看出,H1到H2胶料的 G' 变化反而是增大的。

表6 混炼工艺对胶料动态力学性能的影响

项 目	胶料编号								
	L0	L1	L2	L3	M1	M2	M3	H1	H2
$T_g/^\circ\text{C}$	-20	-18	-18	-17	-18	-18	-18	-18	-18
0℃									
E'/MPa	26.0	27.8	21.1	17.0	21.5	16.1	13.8	29.5	15.1
E''/MPa	9.5	11.8	9.5	7.9	9.7	7.4	6.6	13.3	7.0
$\tan\delta$	0.367	0.424	0.453	0.466	0.452	0.459	0.478	0.451	0.462
70℃									
E'/MPa	12.3	9.6	7.4	6.4	7.8	6.1	5.3	6.8	5.9
E''/MPa	1.6	1.1	0.8	0.7	0.8	0.6	0.5	0.7	0.6
$\tan\delta$	0.132	0.116	0.108	0.107	0.104	0.096	0.097	0.097	0.095

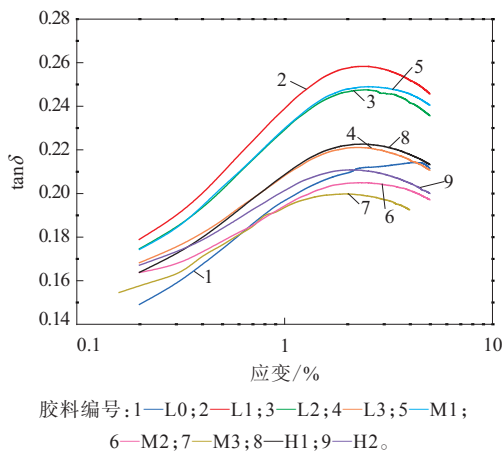


图3 不同混炼条件下胶料的DMA应变扫描曲线

2.5 白炭黑硅烷偶联反应动力学

白炭黑硅烷偶联反应很复杂,近年来学者们进行了大量的研究,通过副产物乙醇的释放量或反应剩余硅烷的量来进行计算。本工作根据模量计算硅烷偶联反应程度,以此作为反应的转化率,假设反应为一级反应,通过一级反应速率方程及Arrhenius方程对硅烷偶联剂Si75与白炭黑之间的反应活化能进行计算^[10]:

$$\ln\left(\frac{1}{1-x}\right) = kt \tag{1}$$

$$\ln k_a = \ln A - \frac{E_a}{RT} \tag{2}$$

$$\ln\left(\frac{k_2}{k_1}\right) = \frac{E_a}{R}\left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}\right) \tag{3}$$

式(1)为一级反应速率方程, x 为白炭黑硅烷偶联反应程度, k 为反应速率常数, t 为恒温混炼时间。式(3)为Arrhenius方程式(2)的定积分形式, A 为指前因子, E_a 为硅烷偶联剂Si75与白炭黑之间的反应活化能, T 为恒温混炼温度, R 为常数。通过不同反应时间的硅烷偶联反应程度计算反应速率常数,以此通过Arrhenius方程计算得到该反应的 E_a 为22.3 kJ·mol⁻¹。

2.6 大配合优化试验

对工厂现用相同体系胶料进行白炭黑硅烷偶联反应程度测定,为进一步优化工艺,提升胶料性能,通过以上研究结果及Arrhenius方程对相关混炼工艺进行改进,提高混炼温度以促进填料分散,降低滞后损失,从而降低滚动阻力。

大配合试验采用啮合型串联密炼机,通过啮合型转子间的小空间,达到对胶料的加强混合,进

一步精准控温实现恒温混炼,混炼工艺与小配合试验基本一致。

设定调整后胶料的白炭黑硅烷偶联反应程度为90%,恒温混炼温度为145℃,通过以上研究结果及Arrhenius方程计算最优反应时间,大配合试验结果见表7。

表7 大配合优化试验结果

项 目	优化前胶料编号		优化后胶料编号	
	A	B	A1	B1
混炼温度/℃	135	145	145	145
混炼时间/s	120	90	160	110
白炭黑硅烷偶联				
反应程度/%	77	85	92	89
门尼粘度[ML(1+4)				
100℃]	115	108	106	103
硫化仪数据(161℃)				
$F_{max}/(dN\cdot m)$	24.4	21.1	17.9	19.2
t_{40}/min	5.2	4.2	4.8	4.3
t_{90}/min	18.7	14.9	11.4	13.0
70℃时的tanδ	0.133	0.116	0.105	0.098
ΔG'/kPa	2 563	1 417	1 279	994
硫化胶性能 ¹⁾				
邵尔A型硬度/度	66	68	64	65
10%定伸应力/MPa	0.78	0.80	0.72	0.70
25%定伸应力/MPa	1.09	1.21	1.00	1.08
300%定伸应力/MPa	10.0	14.0	14.5	13.7
拉伸强度/MPa	16.5	20.1	17.9	16.5
拉断伸长率/%	432	404	358	345

注:1)同表4。

从表7可以看出:与优化前胶料相比,优化后胶料的白炭黑硅烷偶联反应程度增大,胶料的门尼粘度减小,硫化速度加快,70℃时的tanδ和ΔG'明显减小;说明胶料Payne效应减弱,白炭黑分散更好;硫化胶的10%定伸应力减小,表明填料-填料间的作用力减小,白炭黑之间的团聚现象减少;300%定伸应力和拉伸强度与白炭黑硅烷偶联反应程度的相关性很小,这是由于大应变下的模量主要由胶料的交联体系所决定。

3 结论

(1)胶料的恒温混炼工艺对白炭黑硅烷偶联反应程度及物理性能有很大的影响。随着白炭黑硅烷偶联反应程度的增大,胶料的门尼焦烧时间延长,硫化时间缩短,硫化胶的硬度和小应变下的模量减小,填料与填料间的相互作用减弱;大应变

下的模量主要与胶料的交联体系有关;Payne效应减弱,70℃时的 $\tan\delta$ 明显减小,白炭黑在体系中的分散均匀性提高。

(2)白炭黑的硅烷偶联反应程度对混炼温度的敏感度较高,混炼温度对白炭黑硅烷偶联反应程度的影响大于混炼时间的影响。结合挤出形态、胶料物理性能及动态力学性能,可以得出最佳混炼温度在140~145℃之间,混炼时间在100~180 s之间。较高的混炼温度会加剧交联反应,引起模量的增大;较长的混炼时间会打碎胶料内部的长分子链,增加生产成本。而当混炼时间过短且温度很低时,白炭黑硅烷偶联反应程度降低,胶料中填料-填料间的作用力较大,白炭黑分散差,胶料的滞后损失明显增大。

(3)为提升胶料的物理性能,改善现有白炭黑胶料的混炼工艺,提高白炭黑硅烷偶联反应程度,通过计算硅烷偶联反应的表现活化能,得到大配合混炼工艺的最优混炼时间,可进一步改善白炭黑在体系中的分散效果,提高白炭黑的实际应用效果。

参考文献:

- [1] 周良玉,尹荔松,周克省,等.白炭黑的制备、表面改性及应用研究进展[J].材料导报,2003,17(11):56-59.
- [2] 王奎,李乾波,王冲,等.纳米二氧化硅阻燃环氧树脂研究[J].塑料科技,2021,49(8):43-46.
- [3] 于晓波,刘峰,王小菊,等.硅烷偶联剂对白炭黑填充溴化丁基橡胶/天然橡胶并用胶性能的影响[J].橡胶科技,2022,20(3):131-136.
- [4] 王梦蛟,YAKOV KUTSOVSKY,王进文.填料对轮胎抗湿滑性能的影响(二):填料-弹性体相互作用对水润滑性能的影响(上)[J].世界橡胶工业,2013,40(4):7-12.
- [5] 王元霞.轮胎胎面胶抗湿滑性能及其机理的研究[D].北京:北京化工大学,2011.
- [6] 杜海峰.硅烷偶联剂掺杂炭黑制备抗静电硅橡胶及其性能研究[D].西安:西安科技大学,2020.
- [7] 潘其维,王兵兵,周瑛,等.一种硅烷偶联剂的合成及其在白炭黑/天然橡胶复合材料中的应用[J].高分子学报,2014(2):202-209.
- [8] 王宝金,杨旭,王磊,等.应用橡胶加工分析仪研究白炭黑胶料的硅烷化反应和填料聚集[J].橡胶工业,2022,69(1):11-16.
- [9] 王丹灵,宋义虎,冯杰,等.白炭黑的特性及其硅烷偶联反应机理和混炼工艺[J].轮胎工业,2020,40(9):515-525.
- [10] HUNSCHKE A,GÖRL U,KO BAN H G,et al. Investigation on the reaction silica-organosilane and organosilane-polymer. Part I [J]. Kautschuk Gummi Kunststoffe,1997,51(5):525-533.

收稿日期:2023-03-22

Effects of Mixing Process on Silane Coupling Reaction Degree of Silica and Properties of Compounds

ZHAO Xiaodong, DONG Kang, LIU Wenguo, CHEN Yating, WANG Lufei, HUANG Yigang, WANG Jun
(Qingdao Doublestar Tire Industry Co., Ltd, Qingdao 266400, China)

Abstract: The effects of mixing processes on the silane coupling reaction degree of silica and the properties of silica filled rubber compounds were studied. The results showed that with the increase of silane coupling reaction degree of silica, the Mooney scorch time of the compound was prolonged, the curing rate was accelerated, the modulus under small strain and the Payne effect decreased, the filler-filler interaction was weakened, the loss factor at 70℃ was significantly reduced, and the dispersion uniformity of silica in the compound was improved. It was found that the silane coupling reaction degree of silica was highly sensitive to mixing temperature, and the influence of mixing temperature on silane coupling reaction degree of silica was greater than that of mixing time. When the mixing temperature was 140~145℃ and the mixing time was 100~180 s, the physical properties of the compound were the best. By calculating the apparent activation energy of the silane coupling reaction of silica, the optimum mixing time for the workshop process was obtained.

Key words: mixing process; silica; silane coupling reaction degree; processability; physical property; dynamic mechanical property