

一、本案已向

國家(地區)申請專利

申請日期

案號

主張專利法第二十四條第一項優先權

加拿大 CA

2002/01/17

2,368,363

有

二、☐主張專利法第二十五條之一第一項優先權：

申請案號：

無

日期：

三、主

日期：

四、☐有

寄存國家：

寄存機構：

寄存日期：

寄存號碼：

無

☐有關微生物已寄存於國內(本局所指定之寄存機構)：

寄存機構：

寄存日期：

寄存號碼：

無

☐熟習該項技術者易於獲得，不須寄存。

五、發明說明(1)

技術領域

本發明涉及二氧化矽填充的鹵化丁基彈性體，特別是溴化丁基彈性體(BIIR)。

背景技術

已知增強填料如炭黑和二氧化矽極大地改進彈性體複合物的強度和疲勞性能。也已知在彈性體和填料之間發生化學相互作用。例如，由於在這些共聚物中存在許多碳-碳雙鍵，在炭黑和高度不飽和彈性體如聚丁二烯(BR)和苯乙烯丁二烯共聚物(SBR)之間發生良好的相互作用。丁基彈性體可含有在BR或SBR發現的僅有十分之一，或更少的碳-碳雙鍵，並且已知丁基彈性體製造的複合物與炭黑相互作用較差。例如，通過混合炭黑與BR和丁基彈性體的結合物而製造的複合物產生了包含大量炭黑的BR的區域結構，和包含非常少量炭黑的丁基區域結構。也已知丁基複合物具有差的耐磨性。

加拿大專利申請2,293,149顯示可以通過將鹵化丁基彈性體與二氧化矽和特定矽烷結合而製造具有大大改進的性能的填充丁基彈性體組合物。這些矽烷用作鹵化丁基彈性體和填料之間的分散劑和黏結劑。然而，使用矽烷的缺點之一是在製造過程中析出醇，由此過程生產的製品在使用期間也有可能析出醇。另外，矽烷顯著地增加了所得製品的成本。

共同未決的加拿大專利申請2,339,080公開了含有某些

五、發明說明(2)

有機化合物的填充鹵化丁基彈性體複合物，該有機化合物包含至少一種鹼性含氮基團和至少一個羥基，增強了鹵化丁基彈性體與炭黑和礦物質填料的相互作用，導致改進的複合物性能如拉伸強度和磨耗(DIN)。

發明概要

本發明提供了含有鹵化丁基彈性體、至少一種礦物質填料和至少一種矽氮烷化合物的組合物的製造方法。本發明還提供了含有鹵化丁基彈性體、至少一種礦物質填料和至少一種矽氮烷化合物的填充鹵化丁基彈性體組合物。特別是，在與本領域已知方法相比顯著地降低了成本的情況下，它提供了用於生產這類填充組合物而不析出醇的方法。

令人驚奇地，已經發現矽氮烷化合物增強了鹵化丁基彈性體與礦物質填料的相互作用，導致改進的複合物性能如拉伸強度和磨耗(DIN)。認為矽氮烷化合物是將二氧化矽分散和黏結到鹵化彈性體上。

因此，在另一方面，本發明提供了一種方法，該方法包括在至少一種矽氮烷化合物存在下，混合鹵化丁基彈性體與至少一種礦物質填料，並硫化所得的填充鹵化丁基彈性體。具有改進性能的所得的組合物形成了本發明的另一方面。

另外，已經發現矽氮烷化合物和添加劑的混合物（該添加劑包含至少一個羥基和含有鹼性胺的官能團）增強了

五、發明說明 (3)

鹵化丁基彈性體與礦物質填料的相互作用，導致改進的複合物性能如拉伸強度和耐磨性(DIN)。

因此，在另一方面，本發明提供一種方法，該方法包括在至少一種矽氮烷化合物和一種添加劑的存在下，混合鹵化丁基彈性體與至少一種礦物質填料，所述添加劑包含至少一個羥基和含有鹼性胺的官能團，並硫化所得的填充鹵化丁基彈性體。具有改進性能的所得的組合物形成了本發明的另一方面。

與礦物質填料和矽氮烷化合物或矽氮烷化合物和含羥基和胺的添加劑的混合物相混合的鹵化丁基彈性體可以是與另一種彈性體或彈性體複合物的混合物。鹵化丁基彈性體應當構成任何這樣的混合物的5%以上。優選，鹵化丁基彈性體應當構成任何這樣的混合物的至少10%。在一些情況下，優選不使用混合物而使用鹵化丁基彈性體作為唯一彈性體。然而，如果要使用混合物，則其它彈性體可以是，例如，天然橡膠、聚丁二烯、苯乙烯-丁二烯或聚-氯丁二烯或包含一種或多種這些彈性體的彈性體複合物。

可以硫化填充的鹵化丁基彈性體以獲得具有改進性能（例如在耐磨性，捲動阻力和牽引力方面）的產物。可以採用硫進行硫化。硫的優選用量為0.3至2.0重量份每一百份橡膠。也可以按照0.5重量份至2重量份使用活化劑，例如，氧化鋅。也可以在硫化之前向彈性體中加入其它成分，例如硬脂酸，抗氧劑，或促進劑。然後以已知方式進行硫硫化。參見，例如，由Chapman & Hall, 1995 出版的

五、發明說明(4)

“橡膠技術(Rubber Technology)”,第3版的“橡膠的混煉和硫化(The Compound and Vulcanization of Rubber)”,第2章,該文獻的公開內容在考慮到對本方法的管轄權下併入作為參考。

也可以使用已知用於硫化鹵化丁基彈性體的其它硫化劑。已知許多化合物,例如二烯親和物(例如間苯基-雙-馬來醯亞胺,HVA2)、酚醛樹脂、胺、胺基酸、過氧化物、氧化鋅等。也可以使用上述硫化劑的組合。

在採用硫進行硫化之前,可以將本發明的礦物質填充鹵化丁基彈性體與其它彈性體或彈性體複合物混合。以下進一步討論此情況。

發明詳細說明

在此使用的詞語“鹵化丁基彈性體”表示氯化或溴化丁基彈性體。優選是溴化丁基彈性體,和藉由實施例,參考這類溴化丁基彈性體敘述本發明。然而,應當理解,本發明擴展到使用氯化丁基彈性體。

因此,適用於本發明實施的鹵化丁基彈性體包括,但不限於,溴化丁基彈性體。可以通過溴化丁基橡膠(它是異烯烴,通常是異丁烯和共聚單體的共聚物,該共聚單體通常是C₄-C₆共軛二烯烴,優選異戊二烯-(溴化異丁烯-異戊二烯-共聚物BIIR))獲得這類彈性體。然而,可以使用不是共軛二烯烴的共聚單體,可以提及烷基取代的乙烯基芳族共聚單體如C₁-C₄-烷基取代苯乙烯。市售的這類彈性體

五、發明說明 (5)

的例子是溴化異丁烯甲基苯乙烯共聚物(BIMS)，其中共聚單體是對甲基苯乙烯。

溴化丁基彈性體典型地包括0.1至10wt%衍生自二烯烴(優選異戊二烯)的重複單元和90至99.9wt%衍生自異烯烴(優選異丁烯)的重複單元(基於聚合物的烴含量)和0.1至9wt%溴(基於溴化丁基聚合物)。典型的溴化丁基聚合物的分子量，表達為根據DIN 53 523(ML 1+8在 125°C下)的門尼黏度，為25至60。

為了用於本發明，溴化丁基彈性體優選包含0.5至5wt%衍生自異戊二烯的重複單元(基於聚合物的烴含量)和95至99.5wt%衍生自異丁烯的重複單元(基於聚合物的烴含量)和0.2至3wt%，優選0.75至2.3wt%溴(基於溴化丁基聚合物)。

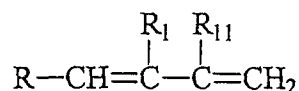
可以將穩定劑加入到溴化丁基彈性體中。合適的穩定劑包括硬脂酸鈣和環氧大豆油，優選使用量為0.5至5重量份每100重量份溴化丁基橡膠(phr)。

合適的溴化丁基彈性體的例子包括購自Bayer公司的Bayer Bromobutyl®2030, Bayer Bromobutyl®2040(BB2040), 和Bayer Bromobutyl® X2。Bayer BB2040 的門尼黏度(ML 1+8 @ 125°C)為39±4，溴含量為 2.0±0.3wt%和合適的分子量為500,000克/莫耳。

用於本發明方法的溴化丁基彈性體也可以是溴化丁基橡膠的接枝共聚物和基於共軛二烯烴單體的聚合物。我們的共同未決加拿大專利申請2,279,085涉及通過混合固體溴

五、發明說明(6)

化丁基橡膠與基於共軛二烯烴單體的固體聚合物而製造這樣接枝共聚物的方法，該共聚物也包括一些C-S-(S)_n-C鍵，其中n是1至7的整數，在大於50°C的溫度下進行混合，其時間足以引起接枝。此申請的公開內容在此併入作為參考。接枝共聚物的溴化丁基彈性體可以是任何上述的那些。可以在接枝共聚物中併入的共軛二烯烴一般具有如下結構通式：



其中R是氫原子或包含1至8個碳原子的烷基，其中R₁和R₁₁可以相同或不同，可以選自氫原子和包含1至4個碳原子的烷基。合適共軛二烯烴的一些代表性非限制性例子包括1,3-丁二烯、異戊二烯、2-甲基-1,3-戊二烯、4-丁基-1,3-戊二烯、2,3-二甲基-1,3-戊二烯、1,3-己二烯、1,3-辛二烯、2,3-二丁基-1,3-戊二烯、2-乙基-1,3-戊二烯、2-乙基-1,3-丁二烯等。優選包含4至8個碳原子的共軛二烯烴單體，特別優選1,3-丁二烯和異戊二烯。

基於共軛二烯烴單體的聚合物可以是均聚物，或兩種或多種共軛二烯烴單體的共聚物，或與乙烯基芳族單體的共聚物。

選擇可以非必要使用的乙烯基芳族單體，使其能與所採用的共軛二烯烴單體共聚。一般情況下，可以使用已知採用有機鹼金屬引發劑聚合的任何乙烯基芳族單體。這樣的乙烯基芳族單體通常包含8至20個碳原子，優選8至14個

五、發明說明(7)

碳原子。可以這樣共聚的乙烯基芳族單體的一些例子包括苯乙烯、 α -甲基苯乙烯、各種烷基苯乙烯包括對甲基苯乙烯、對甲氧基苯乙烯、1-乙烯基萘、2-乙烯基萘、4-乙烯基甲苯等。優選用苯乙烯與單獨的1,3-丁二烯共聚或與1,3-丁二烯和異戊二烯兩者三元共聚。

鹵化丁基彈性體可以單獨使用或與如下其它彈性體結合使用：

BR - 聚丁二烯

ABR - 丁二烯/丙烯酸C1-C4烷基酯共聚物

CR - 聚氯丁二烯

IR - 聚異戊二烯

SBR - 苯乙烯含量為1至60wt%，優選20至50wt%的
苯乙烯/丁二烯共聚物

IIR - 異丁烯/異戊二烯共聚物

NBR - 丙烯 含量為5至60wt%，優選10至40wt%的
丁二烯/丙烯 共聚物

HNBR - 部分氫化或完全氫化的NBR

EPDM - 乙烯/丙烯/二烯烴共聚物

填料由礦物質粒子組成，例子包括二氧化矽、矽酸鹽、黏土(如膨潤土)、石膏、氧化鋁、二氧化鈦、滑石等及其混合物。

進一步的例子是：

- 高度分散的二氧化矽，如通過矽酸鹽溶液的沉澱或鹵化矽的火燄水解製造的，其比表面積為5至

五、發明說明(8)

1000m²/g，優選20至400m²/g(BET比表面積)，和主要粒度為10至400nm；二氧化矽也可以非必要地作為與其它金屬氧化物，如Al、Mg、Ca、Ba、Zn、Zr和Ti的氧化物的混合氧化物存在；

- 合成矽酸鹽，如矽酸鋁和鹼土金屬矽酸鹽等；
- BET比表面積為20至400 m²/g和主要粒徑為10至400nm的矽酸鎂或矽酸鈣；
- 天然矽酸鹽，如高嶺土和其它天然二氧化矽；
- 玻璃纖維和玻璃纖維產物(編織物，擠出物)或玻璃微球；
- 金屬氧化物，如氧化鋅、氧化鈣、氧化鎂和氧化鋁；
- 金屬碳酸鹽，如碳酸鎂、碳酸鈣和碳酸鋅；
- 金屬氫氧化物，如氫氧化鋁和氫氧化鎂；或其組合。

這些礦物質粒子在它們的表面上含有羥基，使得它們為親水性的和疏油性的。這加劇了在填料粒子和丁基彈性體之間達到良好相互作用的難度。對於許多目的，優選的礦物質是二氧化矽，特別是通過矽酸鈉的二氧化碳沉澱而製造的二氧化矽。

適用用本發明的乾燥無定形二氧化矽粒子的平均附聚物粒度為1至100微米，優選10至50微米和最優選10至25微米。優選小於10 vol%的附聚物粒子粒度小於5微米或大於50微米。此外合適的無定形乾燥二氧化矽根據

五、發明說明(9)

DIN(Deutsche Industrie Norm)66131測量的BET表面積為50至450平方米/克，根據DIN 53601測量的DBP吸收為150至400克/100克二氧化矽，和根據DIN ISO 787/11測量的乾燥損失為0至10wt%。合適的二氧化矽填料以商標HiSil® 210，HiSil®233和HiSil®243購自PPG Industries Inc。同樣合適的是來自Bayer AG 的Vulkasil®S和Vulkasil®N。

那些礦物質填料可以與已知的非礦物質填料結合使用，如

- 炭黑；將要在此使用的炭黑由燈黑、爐黑或氣黑方法製造和BET比表面積為20至200m²/g，如SAF、ISAF、HAF、FEF或GPF炭黑；

或

- 橡膠凝膠，特別是基於聚丁二烯、丁二烯/苯乙烯共聚物、丁二烯/丙烯 共聚物和聚氯丁二烯的那些。

非礦物質填料通常不在本發明的鹵化丁基彈性體組合物中用作填料，但在一些實施方案中它們的存在量可以至多為40phr。優選礦物質填料應當構成填料總量的至少55wt%。如果將本發明的鹵化丁基彈性體組合物與另一種彈性體組合物共混，該另一種組合物可包含礦物質和/或非礦物質填料。

矽氮烷化合物可含有一個或多個矽氮烷基團，如二矽氮烷。優選是有機矽氮烷化合物。例子包括但不限於六甲基二矽氮烷、七甲基二矽氮烷、1,1,3,3-四甲基二矽氮烷、1,3-雙(氣甲基)四甲基二矽氮烷、1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四

五、發明說明 (10)

甲基二矽氮烷和1,3-二苯基四甲基二矽氮烷。

增強鹵化丁基彈性體、填料和有機矽氮烷的混合物的物理性能的添加劑的例子包括蛋白質、天冬胺酸、6-胺基-己酸、二乙醇胺和三乙醇胺。優選，含羥基和胺的添加劑可包含由亞甲基橋分隔的伯醇基團和胺基團，亞甲基橋可以是支化的。這樣化合物的通式為HO-A-NH₂，其中A表示C1至C20伸烷基，它可以是線性或支化的。

更優選，在兩個官能團之間的亞甲基數目應當為1至4。優選添加劑的例子包括單乙醇胺和N,N-二甲基胺基醇。

要併入鹵化丁基彈性體中的填料量可以在寬範圍內變化。典型的填料量為20至250重量份，優選30份至100份，更優選40至80份每一百份彈性體。矽氮烷化合物的量典型地為0.5至10份每一百份彈性體，優選1至6，更優選2至5份每一百份彈性體。與矽氮烷化合物結合使用的含羥基和胺的添加劑的用量通常為0.5至10份每一百份彈性體，優選1至3份每一百份彈性體。

此外可以存在至多40份加工油，優選5至20份每一百份彈性體。此外，潤滑劑，例如脂肪酸如硬脂酸可以至多3重量份的量，更優選以至多2重量份的量存在。

合適的是，在25至200°C的溫度下，將鹵化丁基彈性體、填料和矽氮烷或矽氮烷/含羥基和胺的添加劑混合物混合在一起。優選在一個混合階段中的溫度大於60°C，和特別優選是90至150°C的溫度。通常混合時間不超過一小

五、發明說明 (11)

時，2至30分鐘的時間通常是合適的。合適的是，在雙輥開煉混合機上進行混合，使填料在彈性體中分散良好。混合也可以在Banbury混合機中進行，或在Haake或Brabender微型密煉機中進行。擠出機也提供良好的混合，並具有允許更短混合時間的優點。也可以在兩個或多個階段中進行混合。此外，可以在不同的設備中進行混合，例如一個階段可以在密煉機中進行和另一個在擠出機中進行。

在填料和鹵化丁基彈性體之間增強的相互作用導致填充彈性體的改進性能。這些改進性能包括更高的拉伸強度，更高的耐磨性，更低的滲透性和更好的動態性能。這些使得填充的彈性體特別適於許多應用，包括但不限於，用於輪胎胎面和輪胎側壁、輪胎內襯、罐襯裏、軟管、輥筒、輸送帶、硫化球膽、防毒面具、藥物外殼和墊片。

在本發明的優選實施方案中，在25°C的標稱開煉機溫度下，在兩輥開煉機中將溴化丁基彈性體，二氧化矽粒子，矽氮烷化合物或矽氮烷/含羥基和胺的添加劑混合物和，非必要地加工油擴充劑混合。然後將混合的複合物放置在兩輥開煉機中和在大於60°C的溫度下混合。由於更高的溫度可引起十分不合需要的硫化並因此阻礙隨後的加工，優選混合溫度不要太高，更優選不超過150°C。在不超過150°C的溫度下的混合這四種成分的產物是具有良好的應力/應變性能的複合物，可容易地在溫熱開煉機上藉由加入硫化劑而進一步加工。

已經發現，本發明的填充鹵化丁基橡膠，特別是填充

五、發明說明 (12)

的溴化丁基橡膠組合物具有許多用途，但特別要提及的是，在輪胎胎面組合物中的用途。輪胎胎面組合物的特性在於它應當具有低捲動阻力，特別是在潮濕情況下具有良好的牽引力，以及良好耐磨性使其耐磨損。本發明的組合物顯示出這些所需的性能。因此，牽引力的指標是在0°C下的 $\tan \delta$ ，在0°C下的高 $\tan \delta$ 相應於高牽引力。捲動阻力的指標是在60°C下的 $\tan \delta$ ，在60°C下的低 $\tan \delta$ 相應於低捲動阻力。捲動阻力是對輪胎向前運動阻力的量度，低捲動阻力是降低燃料消耗所需的。在60°C下低的損耗模量值也是低捲動阻力的指標。如在以下實施例中表示的那樣，本發明的組合物顯示在0°C下的高 $\tan \delta$ ，在60°C下的低 $\tan \delta$ 和在60°C下的低損耗模量。

在如下實施例中進一步敘述本發明。

實施例

測試描述：

耐磨性：

DIN 53-516(60粗粒度Emery紙)

動態性能測試：

使用GABO進行動態測試(在0°C和60°C下的 $\tan \delta$ ，在60°C下的損耗模量)。GABO是用於表徵硫化彈性體材料性能的動態機械分析儀。動態機械性能給予牽引力的量度，通常由在0°C下的高 $\tan \delta$ 值獲得最好的牽引力。在60°C下的低 $\tan \delta$ 值，特別是在60°C下的低損耗模量是低捲動阻力的標識。使用在100°C和6cpm頻率下操作的Alpha

五、發明說明 (13)

Technologies RPA 2000獲得RPA測量值。在0.1， 0.2， 0.5， 1， 2， 5， 10， 20， 50和90°應變下測量應變掃描。

硫化流變：

ASTM D 52-89在1°弧和1.7Hz下的MDR2000E流變儀

成分和一般的混合程式的描述：

Hi-Sil®233 - 二氧化矽-PPG的產品

Sunpar®2280 - 由Sun Oil生產的鏈烷油

Maglite®D - 由CP Hall生產的氧化鎂

以如下任一方法將溴化丁基彈性體(在所有情況下是商品Bayer®Bromobutyl 2030)、二氧化矽、油和矽氮烷或矽氮烷/含羥基和胺的添加劑混合物混合：

i)在77rpm下操作同時使用設定到40°C的Mokon進行熱調節的切線Banbury密煉機。將複合物混合總計6分鐘。最終的橡膠溫度為140°C至180°C。

ii)在24和32rpm下執行的6" X 12"雙輥開煉機。將開煉機輥設定為25°C，總併入時間為10分鐘。然後採用在110°C的輥溫度將混合的複合物進一步“熱處理”10分鐘。最終的橡膠溫度是125°C。然後採用在25°C的開煉機，將硫化劑加入到冷卻的樣品中。

實施例1

通過幾種複合物的配製研究矽氮烷併入鹵化丁基彈性體/二氧化矽複合物中的效果，在該複合物中六甲基二矽氮烷(HMDZ)作為矽氮烷化合物併入。為了對比，也製造

五、發明說明 (14)

沒有矽氮烷的鹵化丁基彈性體/二氧化矽複合物作為對照複合物。

在切線Banbury混合機中，在上述混合條件下，將溴化異戊二烯異丁烯橡膠(BIIR)與矽氮烷和每一百份橡膠60份(phr)的二氧化矽填料(HiSil®233)混合。然後在冷開煉機上向每種複合物中加入相同的硫化劑成分(1phr硬脂酸，0.5phr 硫，和1.5phr的ZnO)。然後將複合物在170°C下硫化 $t_c(90)+10$ 分鐘(用於DIN磨耗測試)或在170°C下硫化 $t_c(90)+5$ 分鐘和測試。表1和2給予產物組成，和包含HMDZ的複合物和不包含填料黏結劑的複合物的物理性能數據。

表1中的數據清楚地顯示加入HMDZ有助於含矽填料在溴化丁基彈性體中黏結和分散的效果。比例M300/M100通常用作彈性體複合物中填料增強程度的相對量度(比例越高，增強越高)。在沒有HMDZ的複合物1d(實施例1d在此用作其他實施例的對照複合物)的M300/M100為1.97時，包含HMDZ的複合物M300/M100數值為3.76至4.13(參見圖1)。在低應變下從RPA測量值獲得的複數模量(G^* , MPa)數值通常用作彈性體複合物中填料增強程度的相對量度(G^* 值越低，填料分散程度越高)。從表1的數據，清楚地看到在向溴化丁基橡膠/二氧化矽複合物中加入HMDZ時觀察到在填料分散中的顯著改進。具體地，對於對照複合物， G^* 數值是2934 MPa，而對於包含HMDZ的複合物，此數值為365-631MPa(參見圖2)。

重要的是，表1中的數據也顯示在填料分散和黏結方

五、發明說明 (15)

面的改進並不影響所得複合物的整體加工性能。在考查表1和圖3中呈現的門尼早期硫化數據時，可以看出向這些溴化丁基橡膠/二氧化矽複合物中併入HMDZ顯著地改進過早硫化安全性(即在 t_{03} 時間中的增加)。

關於這些複合物在輪胎胎面中的性能，參見在 0°C 和 60°C 下的 $\tan \delta$ 值以及在 60°C 的損耗模量值(G'' , MPa)。具體地，在 0°C 下的高 $\tan \delta$ 值是良好牽引力的標識，而在 60°C 下的低 $\tan \delta$ 值和 60°C 下的低 G'' 值是低捲動阻力的標識。從表2呈現的數據，看出HMDZ對在 0°C 下的 $\tan \delta$ 值和 60°C 下的 G'' 值有積極作用。在對照複合物具有0.23的 $\tan \delta(0^{\circ}\text{C})$ 和3.33MPa的 G'' 值(60°C)時，包含HMDZ的複合物具有0.49至0.88的 $\tan \delta(0^{\circ}\text{C})$ 和0.93至1.98MPa的 G'' 值(60°C)。

實施例2

共同未決加拿大專利申請2,339,080敘述包含至少一個羥基和至少一種帶有鹼性胺基團的取代基的添加劑在二氧化矽在對鹵化丁基彈性體複合物的分散和增強中的應用。通過向鹵化丁基彈性體/二氧化矽複合物中併入HMDZ得到的積極作用檢驗HMDZ和上述型式含羥基和胺的添加劑的混合物。此實施例研究在Banbury密煉機中製造的鹵化丁基彈性體/二氧化矽複合物中併入HMDZ和單乙醇胺(MEA)混合物的效果。

在切線Banbury混合機中，在上述混合條件下，將溴化異戊二烯異丁烯橡膠(BIIR)與添加劑和每一百份橡膠60

五、發明說明 (16)

份(phr)的二氧化矽填料(HiSil®233)混合。然後在冷開煉機上向每種複合物中加入相同的硫化劑成分(1phr硬脂酸, 0.5phr 硫, 和 1.5phr的ZnO)。然後將複合物在170°C下硫化 $t_c(90)+10$ 分鐘(用於DIN磨耗測試)或在170°C下硫化 $t_c(90)+5$ 分鐘和測試。表3和4給予產物組成, 以及包含HMDZ/MEA的複合物和僅包含MEA的複合物的物理性能數據。

表3中的數據清楚地顯示加入HMDZ和MEA有助於填料在溴化丁基彈性體中黏結和分散的效果。在對照複合物的M300/M100為1.97時, 包含HMDZ和MEA的複合物的M300/M100數值為2.79至4.30(參見圖4)。另外, 在向溴化丁基橡膠/二氧化矽複合物中加入HMDZ和MEA時觀察到在填料分散中的顯著改進。具體地, 對於對照複合物, G^* 數值是2934 MPa, 而對於包含HMDZ和MEA的複合物, 此數值為304-1609MPa(參見圖5)。看出併入2.9phr的HMDZ和2.2phr的MEA或2.9phr的HMDZ和1.1phr的MEA改進填料分散的程度超過對於僅包含MEA的複合物觀察到的該程度。

表3中的數據表明向鹵化丁基彈性體/二氧化矽複合物中加入HMDZ降低了M300/M100值並增加了DIN磨耗體積損失, 重要的是, 要注意到由 t_{03} 時間的增加所證明的過早硫化安全性上的顯著改進。

從表4中呈現的數據, 看出HMDZ和MEA對0°C下的 $\tan \delta$ 值和60°C下的 G'' 值的積極作用。在對照複合物具有0.23的 $\tan \delta(0^\circ\text{C})$ 和3.33MPa的 $G''(60^\circ\text{C})$ 時, 包含HMDZ和

五、發明說明 (17)

MEA的複合物具有0.43-0.85的 $\tan \delta(0^{\circ}\text{C})$ 和1.10至2.39MPa的 G'' 值(60°C)。此外，與僅包含MEA的鹵化丁基彈性體/二氧化矽複合物達到的數值相比，包含2.9phr的HMDZ和2.2phr的MEA的複合物和包含2.9phr的HMDZ和1.1phr的MEA的複合物具有更優異的 $\tan \delta(0^{\circ}\text{C})$ 和 G'' 值(60°C)。

實施例3

此實施例研究在6" x 12"開煉機中製造的鹵化丁基彈性體/二氧化矽複合物中併入HMDZ和單乙醇胺(MEA)混合物的效果。

在6" x 12"開煉機中，在上述混合條件下，將溴化異戊二烯異丁烯橡膠(BIIR)與添加劑和每一百份橡膠60份(phr)的二氧化矽填料(HiSil®233)混合。然後在冷開煉機上向每種複合物中加入相同的硫化劑成分(1phr硬脂酸，0.5phr 硫，和1.5phr的ZnO)。然後將複合物在 170°C 下硫化 $t_c(90)+10$ 分鐘(用於DIN磨耗測試)或在 170°C 下硫化 $t_c(90)+5$ 分鐘和測試。表5和6給予產物組成，和包含HMDZ/MEA的複合物和僅包含MEA的複合物的物理性能數據。

表5中的數據清楚地顯示加入HMDZ和MEA有助於填料在溴化丁基彈性體中黏結和分散的效果。在對照複合物的M300/M100為1.97時，包含HMDZ和MEA的複合物的M300/M100數值為4.02至6.00(參見圖6)。另外，在向溴化丁基橡膠/二氧化矽複合物中加入HMDZ和MEA時觀察到在

五、發明說明 (18)

填料分散中的顯著改進。具體地，對於對照複合物， G^* 數值是2934MPa，而對於包含HMDZ和MEA的複合物，此數值為256至538MPa(參見圖7)。看出併入與MEA結合的HMDZ改進了增強(M300/M100)和填料分散(在低應變下的 G^*)的程度超過對於僅包含MEA的複合物觀察到的該程度。

當與對照複合物和僅包含MEA的複合物兩者相比，表5中的數據也表明向鹵化丁基彈性體/二氧化矽/MEA複合物中加入HMDZ降低了DIN磨耗體積損失。

從表6中呈現的數據，看出HMDZ和MEA對0°C下的 $\tan \delta$ 值和 G'' 值在60°C下的積極作用。在對照複合物具有0.23的 $\tan \delta(0^\circ\text{C})$ 和3.33MPa的 G'' 值(60°C)時，包含HMDZ和MEA的複合物具有0.50至0.86的 $\tan \delta(0^\circ\text{C})$ 和0.69至1.78MPa的 G'' 值(60°C)。此外，與僅包含MEA的鹵化丁基彈性體/二氧化矽複合物達到的數值相比，包含HMDZ和MEA兩者的複合物具有更優異的 $\tan \delta(0^\circ\text{C})$ 和 G'' 值(60°C)。

實施例4

此實施例研究在Banbury中製造的鹵化丁基彈性體/二氧化矽複合物中併入HMDZ和N,N-二甲基胺基乙醇(DMAE)混合物的效果。

在切線Banbury混合機中，在上述混合條件下，將溴化異戊二烯異丁烯橡膠(BIIR)與添加劑和每一百份橡膠60份(phr)的二氧化矽填料(HiSil®233)混合。然後在冷開煉機

五、發明說明 (19)

上向每種複合物中加入相同的硫化劑成分(1phr硬脂酸, 0.5phr 硫, 和1.5phr的ZnO)。然後將複合物在170°C下硫化 $t_c(90)+10$ 分鐘(用於DIN磨耗測試)或在170°C下硫化 $t_c(90)+5$ 分鐘和測試。表7和8給予產物組成, 和包含HMDZ/DMAE的複合物和僅包含DMAE的複合物的物理性能數據。

表7中的數據清楚地顯示加入HMDZ和DMAE有助於填料在溴化丁基彈性體中黏結和分散的效果。在對照複合物的M300/M100為1.97時, 包含HMDZ和DMAE的複合物的M300/M100數值為2.93至4.27(參見圖8)。另外, 在向溴化丁基橡膠/二氧化矽複合物中加入HMDZ和DMAE時觀察到在填料分散中的顯著改進。具體地, 對於對照複合物, G^* 數值是2934MPa, 而對於包含HMDZ和DMAE的複合物, 此數值為227-1056MPa(參見圖9)。看出併入2.9phr的HMDZ和3.2phr的DMAE或2.9phr的HMDZ和1.6phr的DMAE改進填料分散的程度超過對於僅包含DMAE的複合物觀察到的該程度。

儘管表7中的數據表明向鹵化丁基彈性體/二氧化矽/DMAE複合物中加入HMDZ降低了M300/M100值和增加了DIN磨耗體積損失, 重要的是, 要注意到因這些化合物而帶來的 t_{03} 時間的增加證明了在過早硫化安全性方面的顯著改進。

從表8中呈現的數據, 看出HMDZ和DMAE對0°C下的 $\tan \delta$ 值和 G'' 值的積極作用。在對照複合物具有

五、發明說明 (20)

0.23的 $\tan \delta(0^{\circ}\text{C})$ 和3.33MPa的 G'' 值(60°C)時，包含HMDZ和DMAE的複合物具有0.45至0.82的 $\tan \delta(0^{\circ}\text{C})$ 和0.48至2.31MPa的 G'' 值(60°C)。此外，與僅包含DMAE的鹵化丁基彈性體/二氧化矽複合物達到的數值相比，包含2.9phr的HMDZ和3.2phr的DMAE的複合物或包含2.9phr的HMDZ和1.6phr的DMAE的複合物具有更優異的 $\tan \delta(0^{\circ}\text{C})$ 和 G'' 值(60°C)。

實施例5

此實施例研究在6" x 12"開煉機中製造的鹵化丁基彈性體/二氧化矽複合物中併入HMDZ和N,N-二甲基胺基乙醇(DMAE)混合物的效果。

在6" x 12"開煉機中，在上述混合條件下，將溴化異戊二烯異丁烯橡膠(BIIR)與添加劑和每一百份橡膠60份(phr)的二氧化矽填料(HiSil®233)混合。然後在冷開煉機上向每種複合物中加入相同的硫化劑成分(1phr硬脂酸，0.5phr 硫，和1.5phr的ZnO)。然後將複合物在 170°C 下硫化 $t_c(90)+10$ 分鐘(用於DIN磨耗測試)或在 170°C 下硫化 $t_c(90)+5$ 分鐘和測試。表9和10給出產物組成，和包含HMDZ/DMAE的複合物和僅包含DMAE的複合物的物理性能數據。

表9中的數據清楚地顯示加入HMDZ和DMAE有助於填料在鹵化丁基彈性體中黏結和分散的效果。在對照複合物的M300/M100為1.97時，包含HMDZ和DMAE的複合物的

五、發明說明 (21)

M300/M100數值為4.41至6.55(參見圖10)。另外，在向溴化丁基橡膠/二氧化矽複合物中加入HMDZ和DMAE時觀察到在填料分散中的顯著改進。具體地，對於對照複合物， G^* 數值是2934MPa，而對於包含HMDZ和DMAE的複合物，此數值為245至742MPa(參見圖11)。看出併入2.9phr的HMDZ和3.2phr的DMAE或2.9phr的HMDZ和1.6phr的DMAE改進增強(M300/M100)和填料分散(在低應變下的 G^*)的程度超過對於僅包含DMAE的複合物觀察到的該程度。

表9中呈現的門尼過早硫化數據也敘述在向鹵化丁基彈性體/二氧化矽/DMAE複合物中加入HMDZ時觀察到的對t03時間的積極作用(增加的t03時間意味著改進的加工性能)。

從表10中呈現的數據，看出HMDZ和DMAE對0°C下的tan δ 值和60°C下的 G'' 值的積極作用。在對照複合物具有0.23的tan δ (0°C)和3.33MPa的 G'' 值(60°C)時，包含HMDZ和DMAE的複合物具有0.56至0.86的tan δ (0°C)和0.42至1.61MPa的 G'' 值(60°C)。此外，與僅包含DMAE的鹵化丁基彈性體/二氧化矽複合物達到的數值相比，包含2.9phr的HMDZ和3.2phr的DMAE的複合物或包含2.9phr的HMDZ和1.6phr的DMAE的複合物具有更優異的tan δ (0°C)和 G'' 值(60°C)。

五、發明說明 (22)

表1

實施例	1a	1b	1c	1d
添加劑	HMDZ	HMDZ	HMDZ	對照
添加劑 (phr)	5.8	2.9	1.45	0
應力應變(模頭C DUMBELLS, 硫化tc90+5分鐘, 測試@23°C)				
Hard. ShoreA2	51	60	67	80
Inst. (pts)				
最終張力 (MPa)	18.27	18.7	17.76	11.22
最終伸長率 (%)	876	800	752	894
應變 (%伸長)	應力 (MPa)	應力 (MPa)	應力 (MPa)	應力 (MPa)
25	0.6	0.86	1.2	2.1
50	0.77	1	1.25	2.02
100	1.05	1.28	1.48	1.97
200	2.02	2.49	2.79	2.62
300	4.07	5.28	5.56	3.89
300/100	3.88	4.13	3.76	1.97
DIN磨耗 (硫化tc90+10分鐘@170°C)				
磨耗體積損失 (mm ³)	282	190	189	283

五、發明說明 (23)

複合物門尼過早硫化(小轉子，測試@130°C)				
t值 t03(分鐘)	10.26	15.23	11.89	2.52
t值 t18(分鐘)	24.21	22.23	14.78	9.34
t值 t18-t03(分鐘)	13.95	7	2.89	6.82
MDR硫化特性(測試@170°C, 1°弧, 1.7Hz)				
MH(dN. m)	18.08	24.27	28.77	32.04
ML(dN. m)	3.71	5.12	8.28	17.86
δt'50-t'10(分鐘)	4.36	3.92	3.19	8.33
RPA PAYNE效果(測試@100°C, 30cpm)				
應變	G*	G*	G*	G*
%	kPa	kPa	kPa	KPa
0.28	365.97	466.02	631.4	2934
0.98	413.78	520.18	721.14	3134

五、發明說明 (24)

表2

實施例	1a	1b	1c	1d
添加劑	HMDZ	HMDZ	HMDZ	對照
添加劑 (phr)	5.8	2.9	1.45	0
GABO (硫化tc90+5分鐘@170°C, 測試操作從-100°C到100°C)				
Tan δ@0°C	0.88	0.68	0.49	0.23
Tan δ@60°C	0.23	0.21	0.17	0.08
G''@60°C (MPa)	0.93	1.37	1.98	3.33

五、發明說明 (25)

表3

實施例	2a	2b	2c	2d	2e
添加劑	MEA	HMDZ/MEA	HMDZ/MEA	HMDZ/MEA	HMDZ/MEA
添加劑 (phr)	2.2	2.9/2.2	2.9/1.1	1.45/1.1	1.45/0.55
應力應變(模頭C DUMBELLS, 硫化tc90+5分鐘, 測試@23°C)					
Hard.Shore A2	71	56	53	70	70
Inst. (pts)					
最終張力 (MPa)	14.88	15.91	15.66	16.29	16.05
最終伸長率 (%)	340	567	821	909	1036
應變 (%伸長)	應力 (MPa)	應力 (MPa)	應力 (MPa)	應力 (MPa)	應力 (MPa)
25	1.46	0.773	0.689	1.3	1.34
50	1.75	0.999	0.854	1.34	1.3
100	2.71	1.63	1.13	1.58	1.4
200	6.66	4.08	2.14	2.79	2.23
300	12.79	7.01	3.89	4.73	3.91
300/100	4.72	4.30	3.44	2.99	2.79

五、發明說明 (26)

DIN磨耗 (硫化tc90+10分鐘@170°C)				
磨耗體積損失(mm ³)	232	303	341	291
複合物門尼過早硫化(小轉子, 測試@130°C)				
t值t03(分鐘)	0.09	3.02	7.14	6.27
t值t18(分鐘)	1.71	4.38	11.89	10.81
t值t18-t03 (分鐘)	1.62	1.36	4.75	4.54
MDR硫化特性(測試@170°C, 1°弧, 1.7Hz)				
MH(dN. m)	34.61	21.64	18.67	32.74
ML(dN. m)	9.24	3.71	3.35	6.63
δt'50-t'10 (分鐘)	2.64	4.3	5.98	3.51
RPA PAYNE效果(測試@100°C, 30cpm)				
應變	G*	G*	G*	G*
%	kPa	KPa	kPa	KPa
0.28	676.38	304.68	374.25	1555
0.98	717.37	346.05	381.16	1691.1
				1720.9

五、發明說明 (27)

表 4

實施例	2a	2b	2c	2d	2e
添加劑	MEA	HMDZ/MEA	HMDZ/MEA	HMDZ/MEA	HMDZ/MEA
添加劑 (phr)	2.2	2.9/2.2	2.9/1.1	1.45/1.1	1.45/0.55
GABO(硫化tc90+5分鐘@170°C, 測試操作從-100°C到100°C)					
Tan δ@0°C	0.50	0.82	0.85	0.45	0.43
Tan δ@60°C	0.11	0.20	0.23	0.14	0.14
G''@60°C (MPa)	1.61	1.13	1.10	2.32	2.39

五、發明說明 (28)

表5

實施例	3a	3b	3c	3d	3e
添加劑	MEA	HMDZ/MEA	HMDZ/MEA	HMDZ/MEA	HMDZ/MEA
添加劑 (phr)	2.2	2.9/2.2	2.9/1.1	1.45/1.1	1.45/0.55
應力應變(模頭C DUMBELLS, 硫化tc90+5分鐘, 測試@23°C)					
Hard. Shore A2	80	55	55	67	65
Inst. (pts)					
最終張力 (MPa)	17.4	17.45	20.5	17.57	20.63
最終伸長率 (%)	405	387	498	588	624
應變 (%伸長)	應力 (MPa)	應力 (MPa)	應力 (MPa)	應力 (MPa)	應力 (MPa)
25	2.42	0.8	0.79	1.28	1.21
50	3.04	1.2	1.09	1.41	1.37
100	5.54	2.28	1.92	1.88	1.79
200	10.78	6.69	5.69	3.98	3.77
300	14.86	13.07	11.52	7.56	7.75
300/100	2.68	5.73	6.00	4.02	4.33

五、發明說明 (29)

DIN磨耗 (硫化tc90+10分鐘@170°C)				
磨耗體積損失(mm ³)	263	181	159	174
複合物門尼過早硫化(小轉子, 測試@130°C)				
t值t03(分鐘)	3.9	0.09	3.47	4.13
t值t18(分鐘)	5.32	0.95	6.71	6.34
t值t18-t03 (分鐘)	1.42	0.86	3.24	2.21
				5.75
MDR硫化特性(測試@170°C, 1°弧, 1.7Hz)				
MH(dN. m)	45.93	17.5	20.06	32.39
ML(dN. m)	12.83	4.86	4.52	7.18
δt'50-t'10 (分鐘)	1.21	3.4	3.42	2.45
				2.55
RPA PAYNE效果(測試@100°C, 30cpm)				
應變	G*	G*	G*	G*
%	kPa	kPa	kPa	kPa
0.28	1577.2	256.55	255.86	590.43
				537.89

五、發明說明 (30)

表6

實施例	3a	3b	3c	3d	3e
添加劑	MEA	HMDZ/MEA	HMDZ/MEA	HMDZ/MEA	HMDZ/MEA
添加劑 (phr)	2.2	2.9/2.2	2.9/1.1	1.45/1.1	1.45/0.55
GABO(硫化tc90+5分鐘@170°C, 測試操作從-100°C到100°C)					
Tan δ@0°C	0.28	0.84	0.86	0.50	0.56
Tan δ@60°C	0.08	0.16	0.18	0.14	0.14
G''@60°C (MPa)	2.91	0.69	0.88	1.78	1.59

五、發明說明 (31)

表 7

實施例	4a	4b	4c	4d	4e
添加劑	DMAE	HMDZ/DMAE	HMDZ/DMAE	HMDZ/DMAE	HMDZ/DMAE
添加劑 (phr)	3.2	2.9/3.2	2.9/1.6	1.45/1.6	1.45/0.8
應力應變(模頭C DUMBELLS, 硫化tc90+5分鐘, 測試@23°C)					
Hard. Shore A2	64	54	54	69	70
Inst. (pts)					
最終張力 (MPa)	20.73	18.26	17.79	17.45	15.97
最終伸長率 (%)	428	585	715	756	924
應變 (%伸長)	應力 (MPa)	應力 (MPa)	應力 (MPa)	應力 (MPa)	應力 (MPa)
25	1.13	0.734	0.74	1.26	1.32
50	1.47	1.05	1	1.36	1.34
100	2.48	1.73	1.5	1.7	1.54
200	7.29	4.42	3.39	3.37	2.6
300	13.91	8.21	6.41	5.96	4.51
300/100	5.61	4.21	4.27	3.51	2.93

五、發明說明 (32)

DIN磨耗(硫化tc90+10分鐘@170°C)				
磨耗體積損失(mm ³)	156	161	204	236
				243
複合物門尼過早硫化(小轉子, 測試@130°C)				
t值 t03(分鐘)	0.32	4.86	7.17	7.85
t值 t18(分鐘)	4.7	7.4	12.93	13.13
t值 t18-t03 (分鐘)	4.38	2.54	5.76	5.28
				12.33
MDR硫化特性(測試@170°C, 1°弧, 1.7Hz)				
MH(dN. m)	29.01	22.74	21.3	32.91
ML(dN. m)	8.91	5.17	4.38	5.79
δt'50-t'10 (分鐘)	2.08	3.06	4.87	3.72
				4.67
RPA PAYNE效果(測試@100°C, 30cpm)				
應變	G*	G*	G*	G*
%	kPa	kPa	kPa	kPa
0.28	504.7	227.53	267.66	806.94
0.98	531.22	266.22	280.89	901.32
				1056.2
				1149.6

五、發明說明 (33)

表8

實施例	4a	4b	4c	4d	4e
添加劑	DMAE	HMDZ/DMAE	HMDZ/DMAE	HMDZ/DMAE	HMDZ/DMAE
添加劑 (phr)	3.2	2.9/3.2	2.9/1.6	1.45/1.6	1.45/0.8
GABO(硫化tc90+5分鐘n@170°C, 測試操作從-100°C到100°C)					
Tan δ@0°C	0.70	0.82	0.84	0.56	0.45
Tan δ@60°C	0.10	0.11	0.14	0.14	0.14
G''@60°C (MPa)	0.80	0.48	0.66	1.61	2.31

裝 計 線

五、發明說明 (34)

表9

實施例	5a	5b	5c	5d	5e
添加劑	DMAE	HMDZ/DMAE	HMDZ/DMAE	HMDZ/DMAE	HMDZ/DMAE
添加劑 (phr)	3.2	2.9/3.2	2.9/1.6	1.45/1.6	1.45/0.8
應力應變(模頭C DUMBELLS, 硫化tc90+5分鐘, 測試@23°C)					
Hard. Shore A2	68	53	53	67	65
Inst. (pts)					
最終張力 (MPa)	20.81	22.32	21.53	20.96	20.26
最終伸長率 (%)	494	552	559	569	614
應變(%伸長)	應力 (MPa)	應力 (MPa)	應力 (MPa)	應力 (MPa)	應力 (MPa)
25	1.36	0.73	0.75	1.33	1.24
50	1.61	1.04	1.04	1.58	1.4
100	2.52	1.74	1.73	2.39	1.89
200	7.03	5.25	5.15	5.76	4.09
300	13.04	11.4	10.97	10.96	8.33
300/100	5.17	6.55	6.34	4.59	4.41

五、發明說明 (35)

DIN磨耗(硫化tc90+10分鐘@170°C)				
磨耗體積損失(mm ³)	171	218	245	154
複合物門尼過早硫化(小轉子, 測試@130°C)				
t值t03(分鐘)	0.12	11.5	20.18	8.89
t值t18(分鐘)	5.23	23.24	>30	20.97
t值t18-t03 (分鐘)	5.11	11.74	NR	12.08
MDR硫化特性(測試@170°C, 1°弧, 1.7Hz)				
MH(dN.m)	35.72	19.81	19.55	34.52
ML(dN.m)	10.39	5.81	5.12	9.17
δt'50-t'10 (分鐘)	2.61	8.09	8.49	3.79
RPA PAYNE效果(測試@100°C, 30cpm)				
應變	G*	G*	G*	G*
%	kPa	kPa	kPa	kPa
0.28	672.69	245.56	270.49	646.73
0.98	724.12	251.58	275.81	769.07
				842.28

五、發明說明 (36)

表10

實施例	5a	5b	5c	5d	5e
添加劑	DMAE	HMDZ/DMAE	HMDZ/DMAE	HMDZ/DMAE	HMDZ/DMAE
添加劑 (phr)	3.2	2.9/3.2	2.9/1.6	1.45/1.6	1.45/0.8
GABO(硫化tc90+5分鐘@170°C, 測試操作從-100°C到100°C)					
Tan δ@0°C	0.55	0.86	0.86	0.56	0.56
Tan δ@60°C	0.11	0.11	0.13	0.13	0.15
G'@60°C (MPa)	1.40	0.42	0.53	1.46	1.61

五、發明說明 (37)

圖式簡單說明

圖1至3顯示在實施例1中，加入HMDZ對含矽填料在溴化丁基彈性體中黏結和分散的助效。

圖4至5顯示在實施例2中，加入HMDZ和MEA對含矽填料在溴化丁基彈性體中黏結和分散的助效，其中所得的溴化丁基彈性體/二氧化矽複合物是在Banbury中製造的。

圖6至7顯示在實施例3中，加入HMDZ和MEA對含矽填料在溴化丁基彈性體中黏結和分散的助效，其中所得的溴化丁基彈性體/二氧化矽複合物是在6"X12"開煉機中製造的。

圖8至9顯示在實施例4中，加入HMDZ和DMEA對含矽填料在溴化丁基彈性體中黏結和分散的助效，其中所得的溴化丁基彈性體/二氧化矽複合物是在Banbury中製造的。

圖10至11顯示在實施例5中，加入HMDZ和DMEA對含矽填料在溴化丁基彈性體中黏結和分散的助效，其中所得的溴化丁基彈性體/二氧化矽複合物是在6"X12"開煉機中製造的。

四、中文發明摘要（發明之名稱：

氧化矽填充的彈性體化合物

本發明提供一種填充鹵化丁基彈性體的製造方法，該方法包括混合鹵化丁基彈性體、礦物質填料和矽氮烷化合物或矽氮烷化合物和添加劑的混合物，該添加劑包含至少一個羥基和至少一個帶有鹼性胺基團的取代基，並採用硫或其它硫化體系硫化該填充的彈性體。本發明的優點是(a)在製造期間或在隨後使用從複合物製造的製品期間不析出醇，(b)改進填充鹵化丁基彈性體複合物的過早硫化安全性，它採用二氧化矽作為礦物質填料和含羥基和胺的添加劑作為分散助劑和(c)與目前本領域已知的類似複合物相比，顯著降低複合物的成本。

英文發明摘要（發明之名稱：

Silica-Filled elastomeric compounds

The invention provides a process for preparing a filled halobutyl elastomer, which comprises mixing a halobutyl elastomer, mineral filler and a silazane compound or mixture of a silazane compound and an additive which contains at least one hydroxyl group and at least one substituents which bears a basic amine group, and curing the filled elastomer with sulfur or other curative systems. This invention has the advantages of (a) not evolving alcohol either during the manufacture or subsequent use of the article manufactured from the compound, (b) improving the scorch safety of filled halobutyl elastomer compounds which employ silica as the mineral filler and a hydroxyl- and amine-containing additive as a dispersing aid and (c) significantly reducing the cost of the compound compared to analogous compounds currently known in the art.

9-100833

圖 1

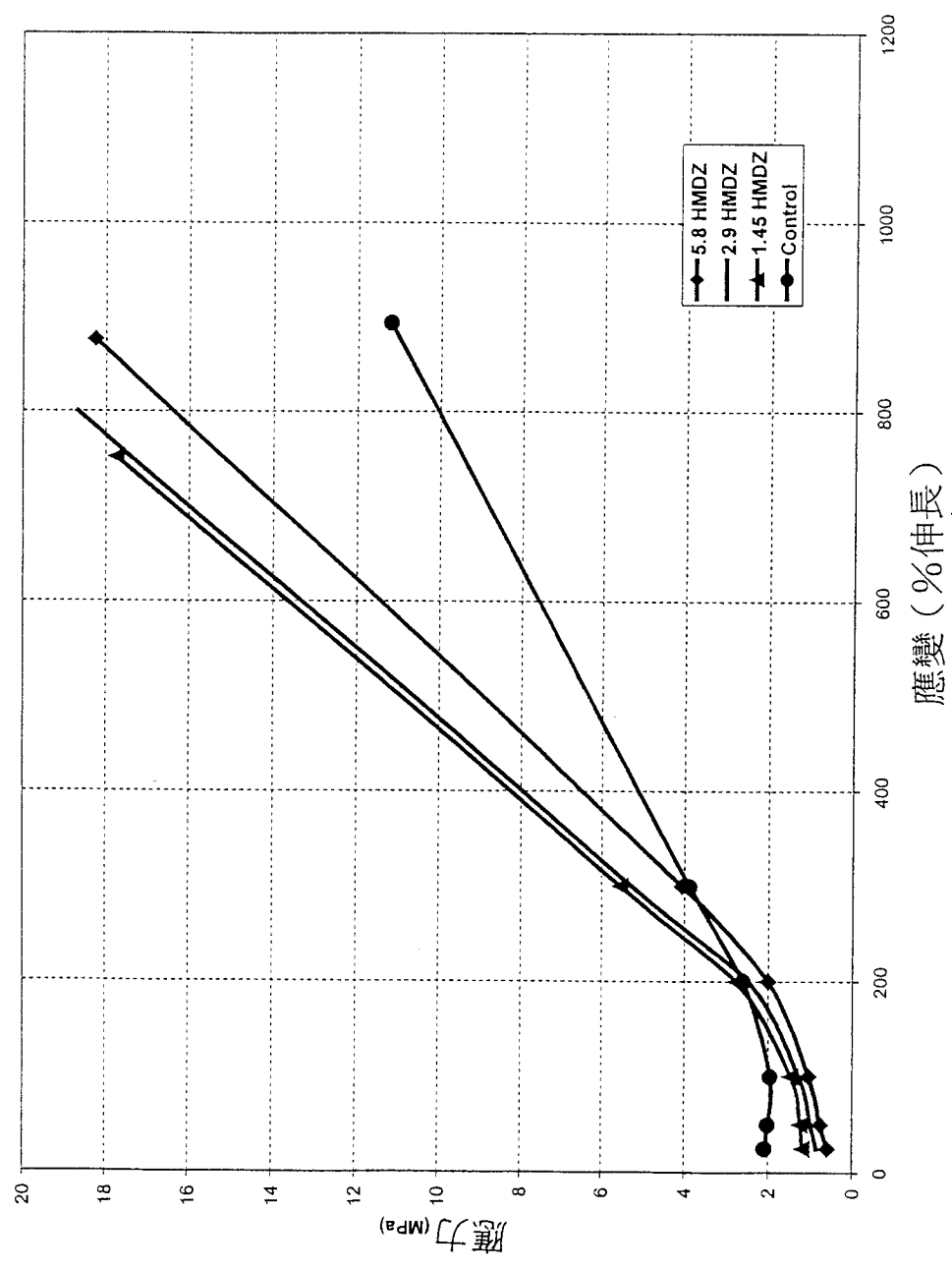


圖 2

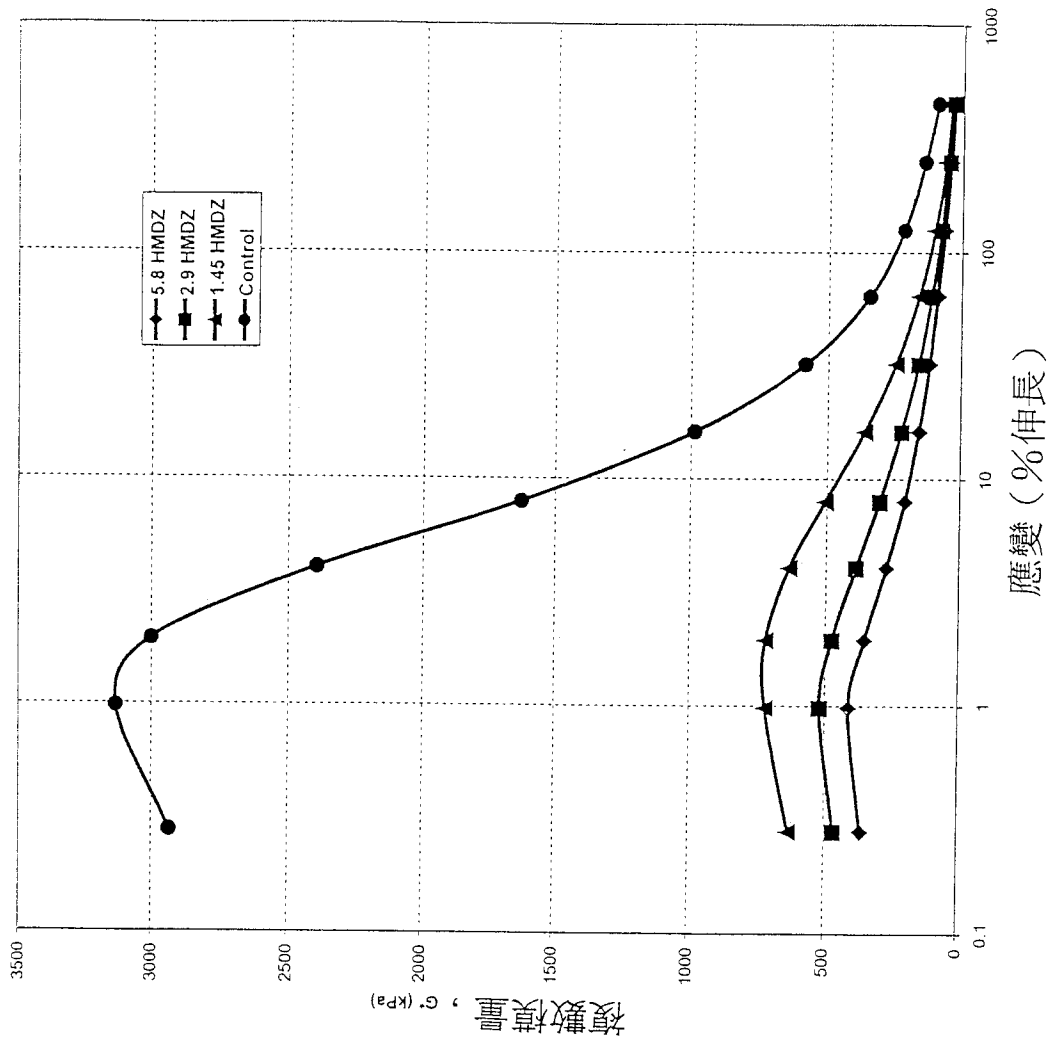


圖 3

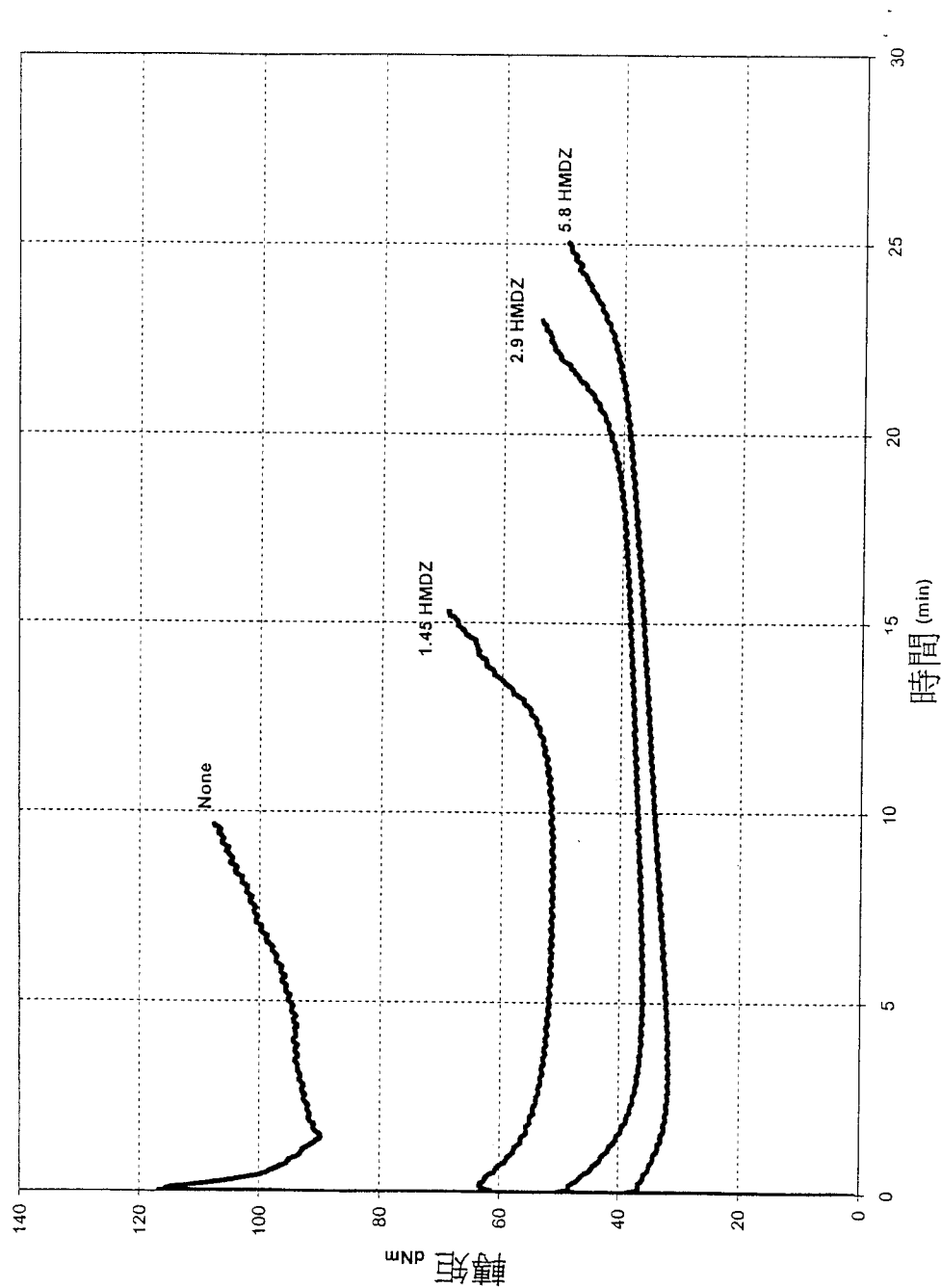


圖 4

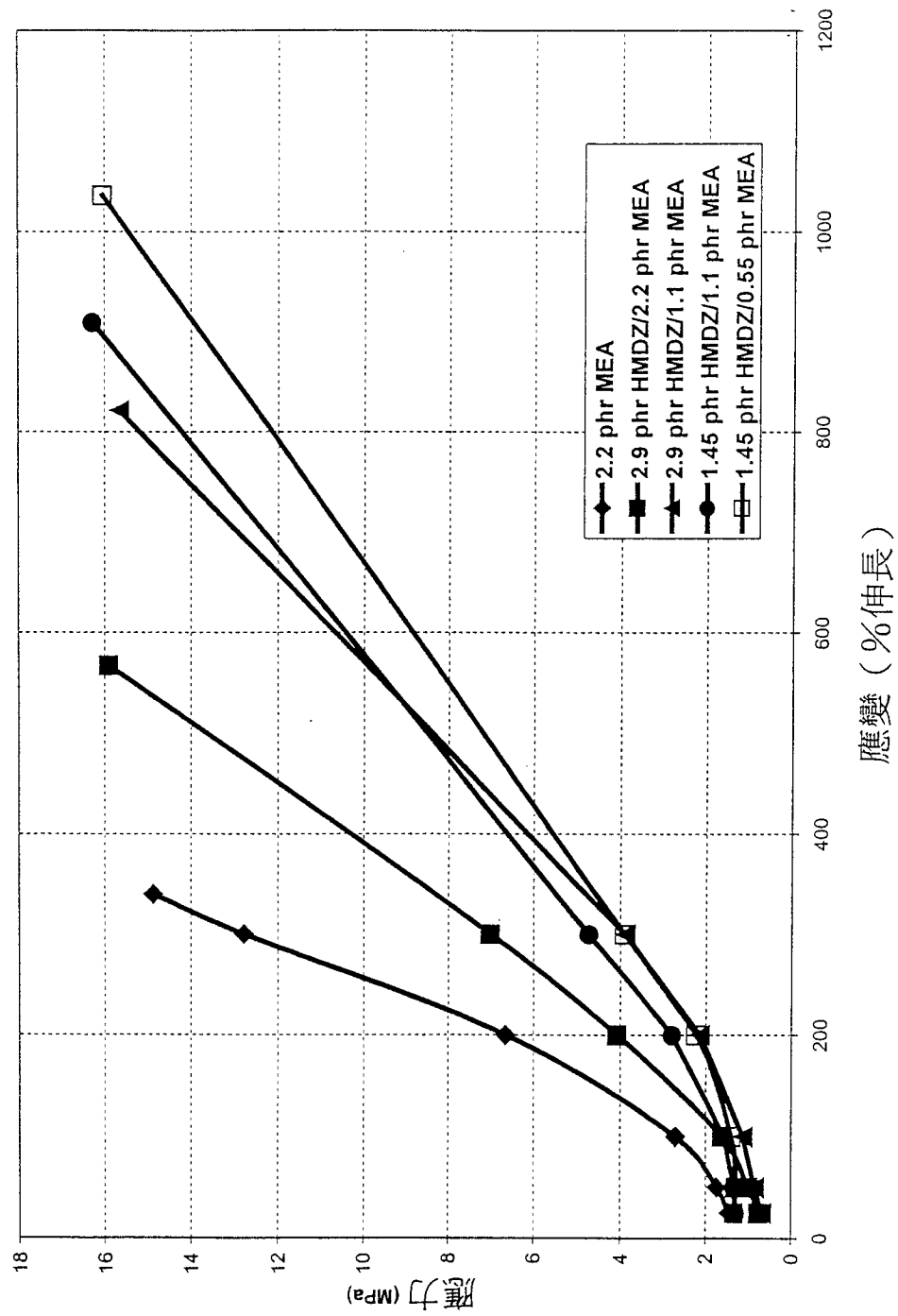


圖 5

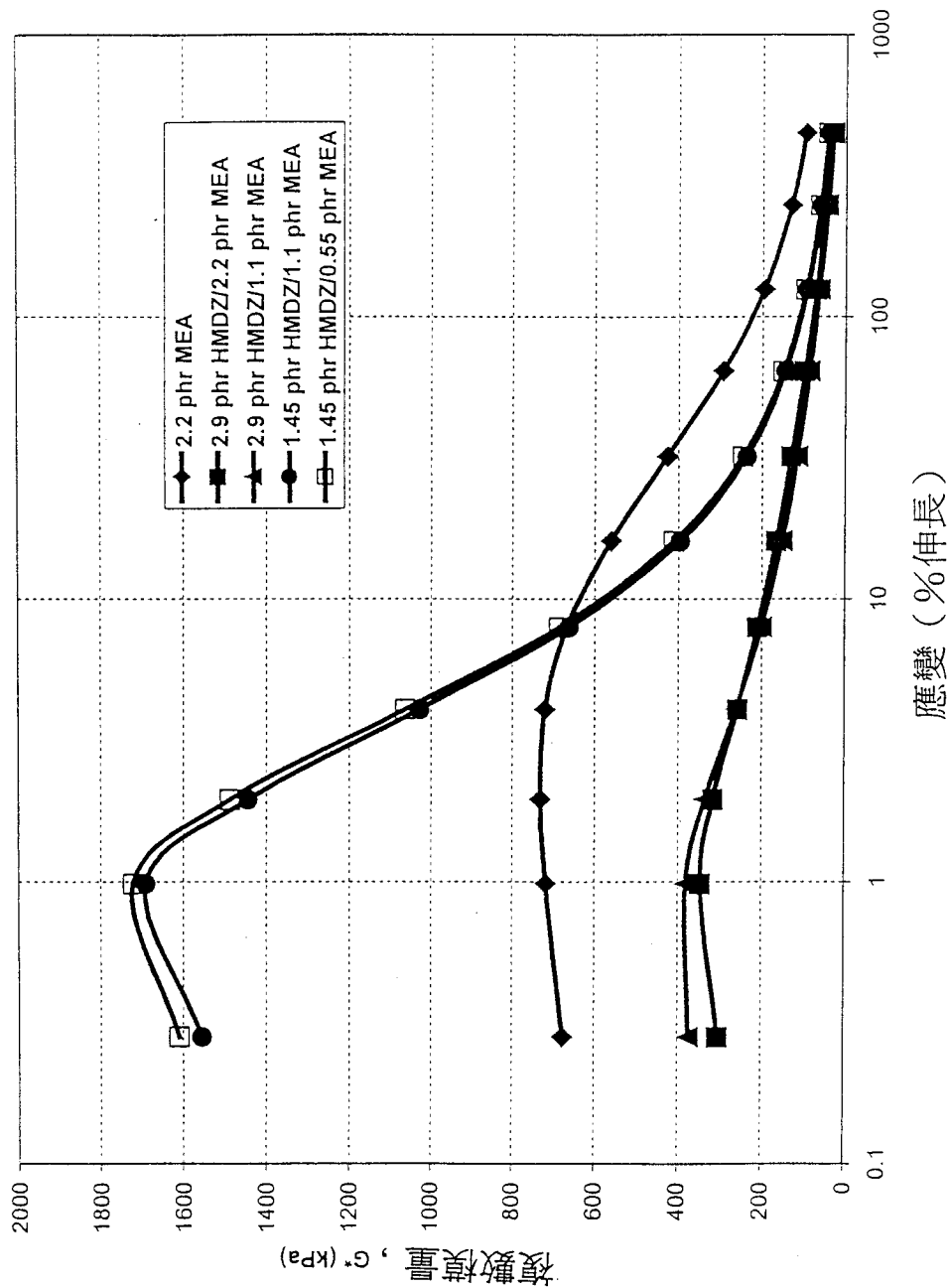


圖6

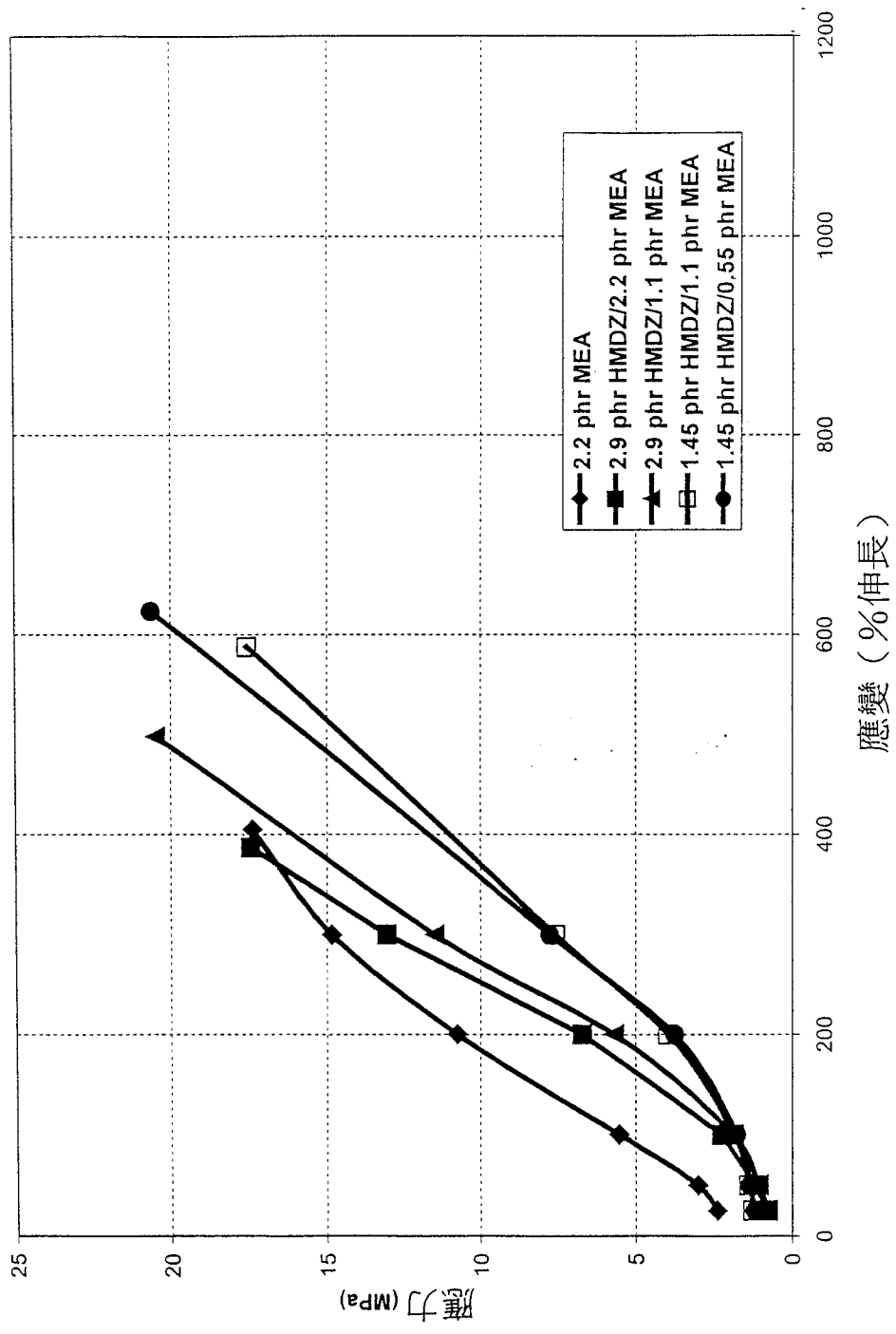


圖 7

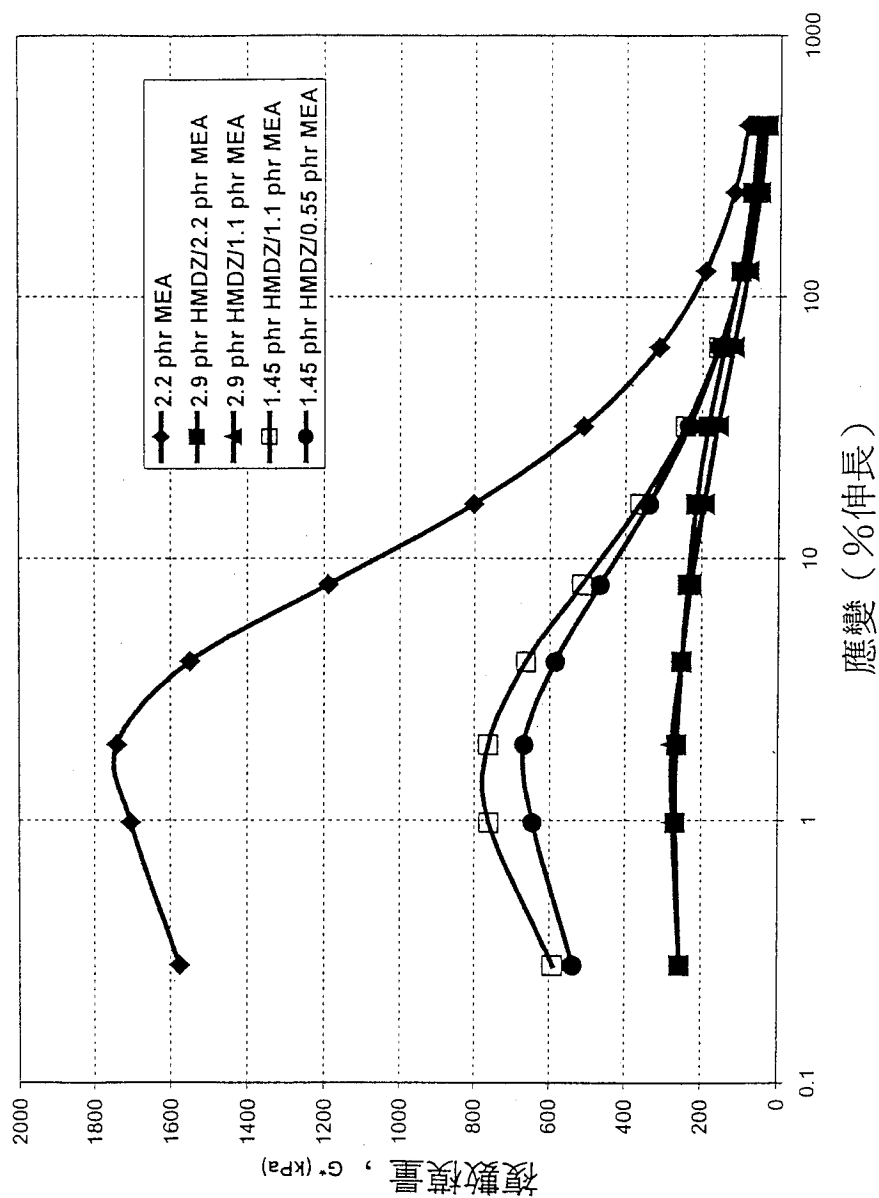


圖 8

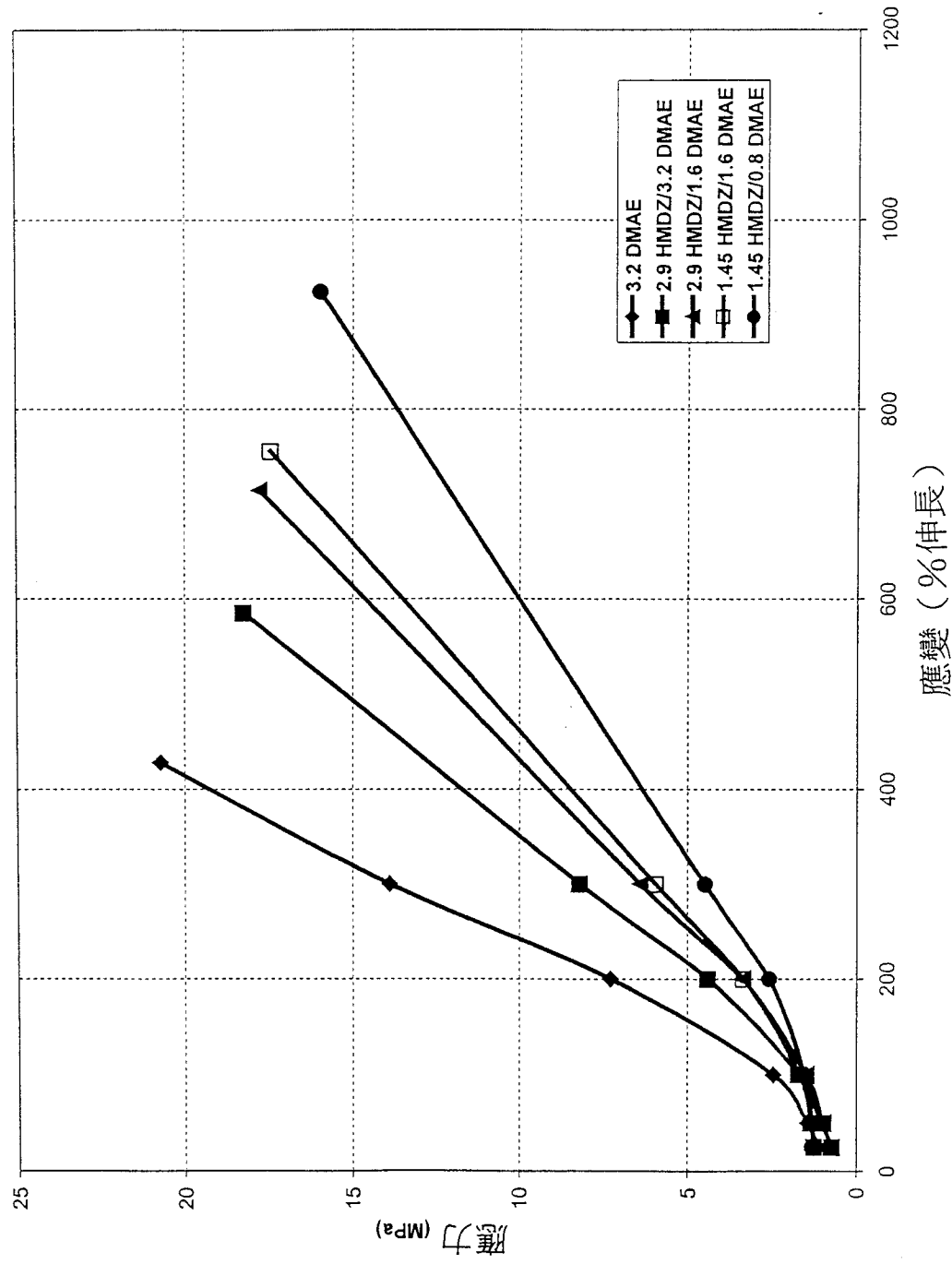


圖 9

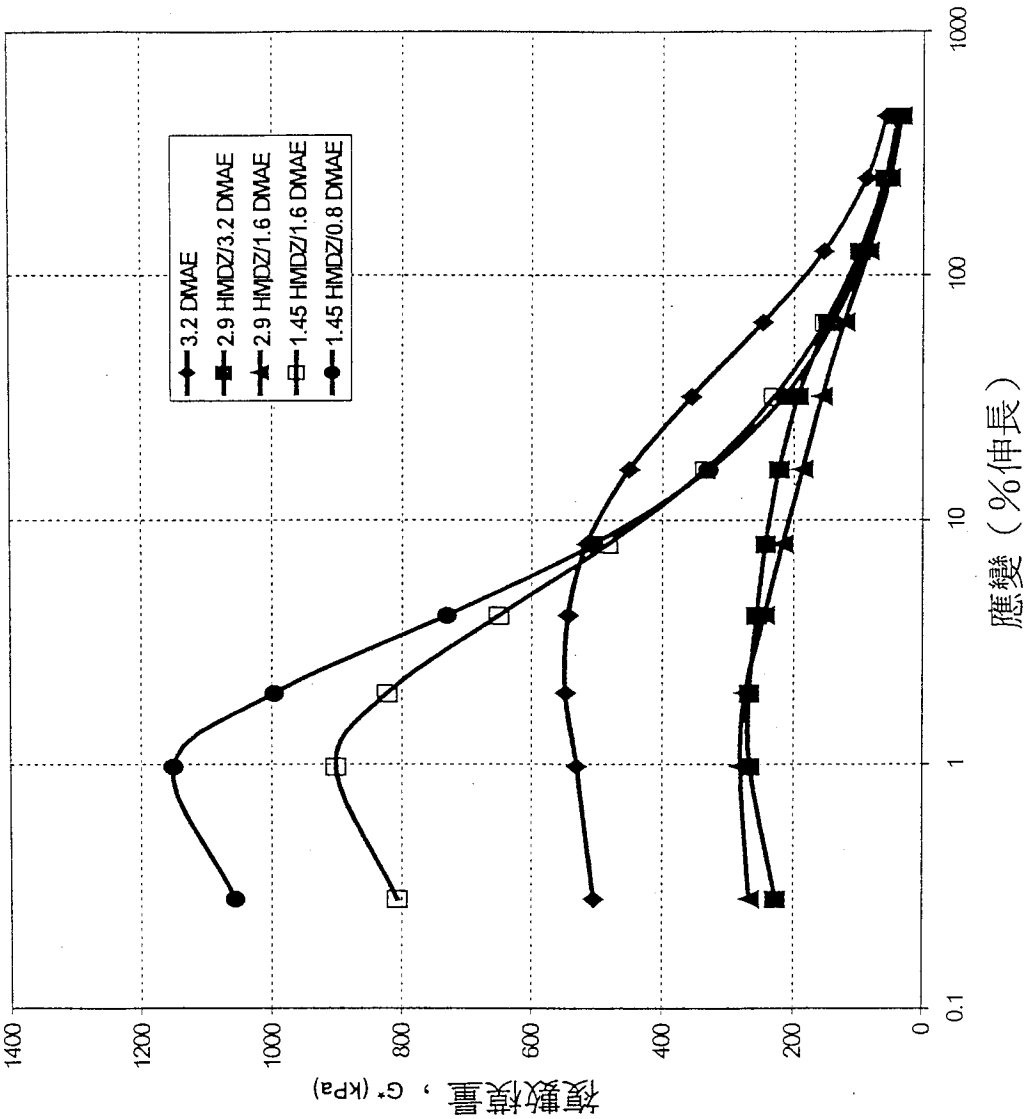


圖 10

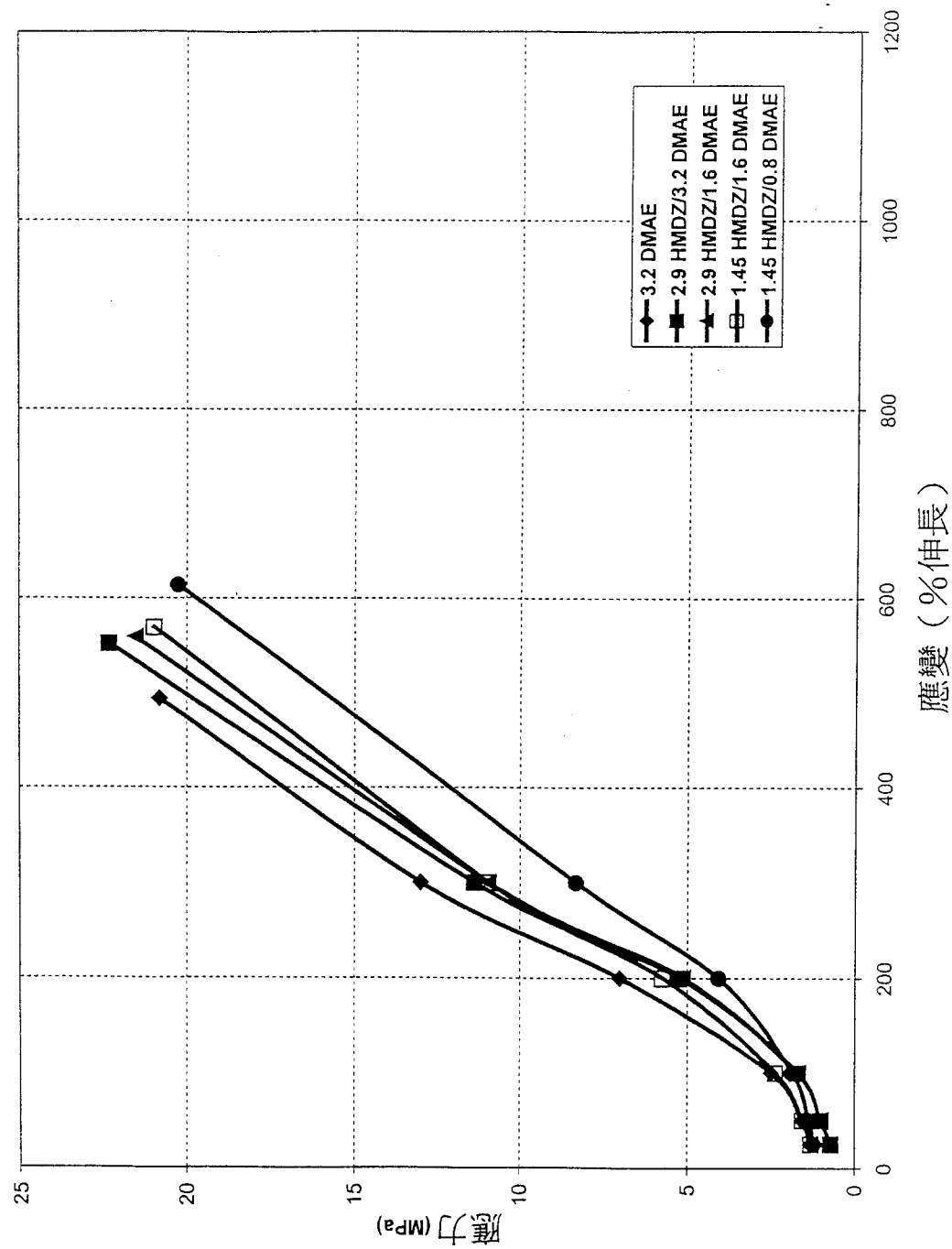
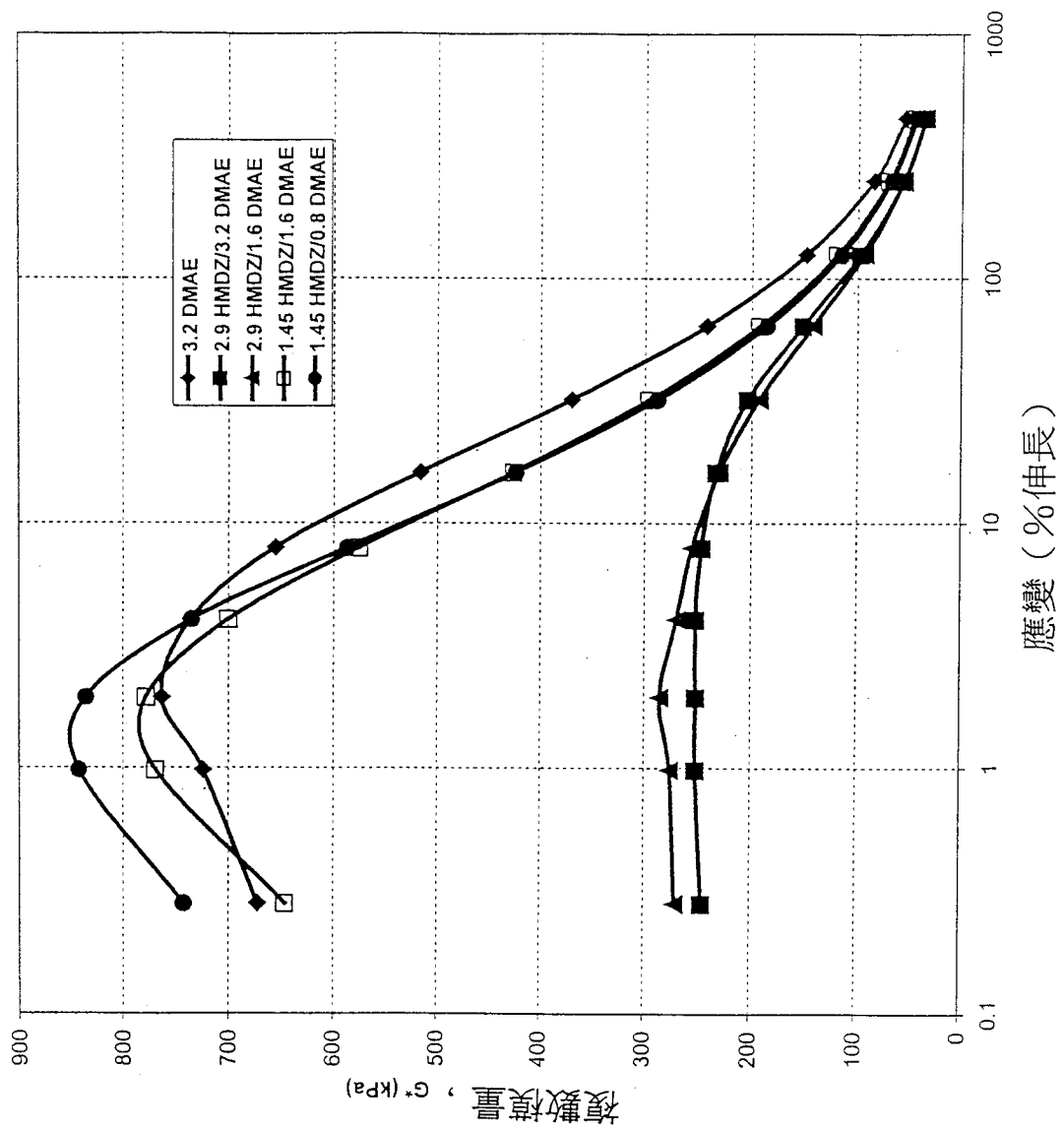


圖 11



(一)、本案指定代表圖爲：第 1 圖

(二)、本代表圖之元件代表符號簡單說明：

無

本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的
化學式：

無

98.5.15 正
請充

發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※ 申請案號： 92100833

※ 申請日期： 92.1.16

※IPC 分類： C08L 15/00, C08K 3/36

一、發明名稱：(中文/英文)

氧化矽填充的彈性體化合物

SILICA-FILLED ELASTOMERIC COMPOUNDS

二、申請人：(共 1 人)

姓名或名稱：(中文/英文)

朗盛公司

LANXESS INC.

☐ 指定

為應受送達人

代表人：(中文/英文)(簽章)

蔡君祥/CHOI, VICTOR KINGSLEY

住居所或營業所地址：(中文/英文)

加拿大安大略省沙尼亞市南維多街 1265 號

1265 VIDAL STREET SOUTH, SARNIA, ONTARIO N7T 7M2, CANADA

國 籍：(中文/英文)

加拿大/CANADA

三、發明人：(共 1 人)

姓 名：(中文/英文)

雷杉得/RESENDES, RUI

國 籍：(中文/英文)

加拿大/CANADA

六、申請專利範圍

1. 一種填充鹵化丁基彈性體的製造方法，該方法包括混合至少一種鹵化丁基彈性體，每 100 份彈性體 20 至 250 份範圍的至少一種礦物質填料和至少一種有機矽氮烷化合物和添加劑的混合物，該添加劑包含至少一個羥基和至少一個帶有鹼性胺基團的取代基，並硫化所得的填充鹵化丁基彈性體，其中與矽氮烷化合物同時使用之添加劑的含量為每 100 份彈性體 0.5 至 10 份之範圍。
2. 根據申請專利範圍第 1 項的方法，其中矽氮烷化合物是二矽氮烷化合物。
3. 根據申請專利範圍第 1 項的方法，其中礦物質填料選自規則或高度分散的二氧化矽、矽酸鹽、黏土、石膏、氧化鋁、二氧化鈦、滑石及其混合物。
4. 根據申請專利範圍第 3 項的方法，其中黏土為膨潤土。
5. 根據申請專利範圍第 1 項的方法，其中鹵化丁基彈性體是溴化丁基彈性體。
6. 根據申請專利範圍第 1 至 5 項中任一項的方法，其中矽氮烷的量為 0.5 至 10 份每 100 份彈性體。
7. 根據申請專利範圍第 1 項的方法，其中在硫化之前，將填充的鹵化丁基彈性體與另一種彈性體或彈性體複合物混合。
8. 一種填充的鹵化丁基彈性體組合物，其含有至少一種鹵化丁基彈性體、每 100 份彈性體 20 至 250 份範圍

六、申請專利範圍

- 的至少一種礦物質填料和至少一種有機矽氮烷化合物和添加劑的混合物，該添加劑包含至少一個羥基和至少一個帶有鹼性胺基團的取代基，其中與矽氮烷化合物同時使用之添加劑的含量為每 100 份彈性體 0.5 至 10 份之範圍。
- 5
9. 一種填充的、硫化的鹵化丁基彈性體組合物，其含有至少一種鹵化丁基彈性體、至少一種礦物質填料和每 100 份彈性體 0.5 至 10 份範圍的至少一種有機矽氮烷化合物和添加劑的混合物，該添加劑包含至少一個羥基和至少一個帶有鹼性胺基團的取代基，其中與矽氮烷化合物同時使用之添加劑的含量為每 100 份彈性體 0.5 至 10 份之範圍。
- 10
10. 根據申請專利範圍第 9 項的填充的、硫化的彈性體組合物，其為用於車輛輪胎的胎面形式。
- 15
11. 根據申請專利範圍第 9 項的填充的、硫化的彈性體組合物，其為用於車輛輪胎的內襯形式。
12. 一種改進填充的、硫化的彈性體組合物耐磨性的方法，該彈性體組合物含有至少一種鹵化丁基彈性體，其藉混合該鹵化丁基彈性體與每 100 份彈性體 0.5 至 10 份範圍的有機矽氮烷化合物和添加劑的混合物，該添加劑包含至少一個羥基和至少一個帶有鹼性胺基團的取代基，其中與矽氮烷化合物同時使用之添加劑的含量為每 100 份彈性體 0.5 至 10 份之範圍。
- 20