

交联密度法研究硅烷偶联剂对室温硫化硅橡胶性能的影响

苏清福 杨 宇 李 刚* 杨小平

(北京化工大学 材料科学与工程学院 有机无机复合材料国家重点实验室, 北京 100029)

摘 要: 采用交联密度法探讨了硅烷偶联剂对 SiO_2 增强端羟基苯基硅橡胶的作用机理及高低温性能的影响。对室温硫化硅橡胶的力学性能、交联密度、热性能等进行了测试, 测试结果表明: 当 γ -氨丙基三乙氧基硅烷 (KH550) 用量为 6 份时, 室温硫化硅橡胶的化学交联密度比例最大, 力学性能最优, SiO_2 与硅橡胶的界面性能最好; 硅橡胶交联体系中物理交联比例的减小导致玻璃化转变温度降低, 硅橡胶的耐低温性能改善; 化学交联密度比例增加, 硅橡胶的耐热性提高。

关键词: 端羟基苯基硅橡胶; 硅烷偶联剂; 二氧化硅; 平衡溶胀法; 机理

中图分类号: TQ333.93

引 言

室温硫化硅橡胶 (RTV) 是指室温条件下分子链两端的活性官能团在水分子或一定的催化剂作用下, 发生交联反应生成三维网状结构的一类硅橡胶^[1]。端羟基苯基硅橡胶作为 RTV 的主体材料, 通过引入苯基破坏硅橡胶的结构规整性, 使硅橡胶低温下难以结晶而具有可使用性, 特别适合于在国防等领域的特殊环境中使用^[2]。

硅烷偶联剂的分子式为 SiYX_3 , 其中 Y 为可与有机基团反应的支链, X 为可与亲水性无机物反应生成 —Si—O—Si— 链段的基团, 通过加入硅烷偶联剂, 可实现无机物与有机物的桥接, 增加两者之间的界面作用力^[3]。近年来对硅烷偶联剂增强 RTV 的研究主要集中在硅烷偶联剂的含量和工艺对产品性能的影响方面, 而对于硅烷偶联剂在室温硫化硅橡胶中, 特别是在以端羟基苯基硅橡胶为主体材料的室温硫化硅橡胶中的作用机理方面的研究较少^[4]。本文通过制备不同 γ -氨丙基三乙氧基硅烷 (KH550) 含量下的室温硫化硅橡胶, 采用力学性能测试、SEM、交联密度测试等技术对硅橡胶的力学性能、热性能及交联密度进行分析和表征, 为研究硅烷

偶联剂对室温硫化硅橡胶的影响提供实验参考。

1 实验部分

1.1 实验原料和仪器

1.1.1 原料

端羟基苯基硅橡胶 (HMPVQ), 苯基含量 (分子链中 C_6H_5 基团与 Si 原子质量比) 8%, 上海树脂厂; SiO_2 , AEDOSLL® R106, 比表面积 $(250 \pm 30) \text{ m}^2/\text{g}$, 德国 Evonik degussa; KH550, 分析纯, 北京市申达精细化工有限公司; 正硅酸乙酯 (TEOS), 分析纯, 广东汕头市西陇化工厂; 二月桂酸二丁基锡 (DBTDL), 分析纯, 天津市博迪化工有限公司; 氨水, 甲苯, 分析纯, 北京化工厂。

1.1.2 仪器

平板硫化仪, XLB-D500 * 500, 浙江湖州东方机械有限公司; 精密电子天平, CP-2102, 分析天平, CP-214, 奥豪斯仪器 (上海) 有限公司; 三辊研磨机, SG-65, 秦皇岛长宝机械有限公司; 真空干燥箱, DZF-3, 上海福玛实验设备有限公司; 邵尔 A 型硬度计, LX-A, 无锡市前州测量仪器厂; 气动冲片机, MZ-4102B, 江都市明珠试验机械厂; 万能材料试验机, Instron 1121, 美国英斯特朗公司; 扫描电子显微镜 (SEM), S-1400N, 日本日立公司; 差示扫描量热仪 (Q20 型)、动态机械热分析仪 (Q800 型)、热重分析仪 (Q50 型), 均产自美国 TA 仪器公司。

收稿日期: 2012-08-28

第一作者: 男, 1987 年生, 硕士生

* 通讯联系人

E-mail: ligang@mail.buct.edu.cn

1.2 试样制备

HMPVQ 120 ℃真空干燥 1 h, SiO₂ 120 ℃干燥 3 h, 称取 100 份的 HMPVQ 和 20 份的 SiO₂ (以 HMPVQ 为 100 份, 相对于 HMPVQ 质量的份数, 如 HMPVQ 份数为 100 g, 则 SiO₂ 为 20 g, 下同) 混合均匀, 在三辊研磨机上研磨 2~3 遍, 加入交联剂 TEOS 6 份、催化剂 DBTDL 0.5 份以及适量的偶联剂 KH550, 混匀后将胶料倒于模具中, 刮刀刮平, 室温硫化 7 d 获得室温硫化硅橡胶胶膜, 用气动冲片机将硫化好的胶膜裁成哑铃状样条。

1.3 性能测试

力学性能测试 按照 GB/T528—2009 测试拉伸性能; 按照 GB/T531.1—2008 测试邵 A 硬度。

微观形貌表征 取新鲜的拉伸断面喷金, 通过 SEM 观察。

热性能测试 通过 DSC 和 DMA 两种方法测量低温性能, 其中 DSC 升温速率 20 ℃/min, 扫描温度范围为 -130 ℃到室温; DMA 升温速率 5 ℃/min, 扫描温度范围为 -130 ℃到室温。通过 TGA 测量高温性能, 升温速率为 10 ℃/min, 扫描温度范围为室温到 900 ℃。

交联密度测定 采用平衡溶胀法^[5], 用溶剂甲苯测量室温硫化硅橡胶的总交联密度 N_1 , 在氨气气氛下用溶剂甲苯测量硅橡胶的化学交联密度 N_2 , 两者之差为物理交联密度 N_3 。

测量 N_1 时, 取厚度约 2 mm, 质量约 0.5 g 的硫化胶样品在 100 mL 的甲苯溶液中浸泡 72 h, 达到溶胀平衡后取出, 迅速用滤纸擦干样品表面溶剂, 用天平称量, 然后真空干燥至质量恒定后再次称量。采用式(1)计算溶胀试样中硫化胶的交联密度

$$N = \frac{1}{1 + \frac{\rho_r}{\rho_s} \left(\frac{m_1}{m_0} - 1 \right) \frac{1}{w}} \quad (1)$$

式(1)中: N 为硫化胶交联密度; ρ_r 为室温硫化硅橡胶的密度, kg/m³; ρ_s 为溶剂的密度, kg/m³; m_1 为溶胀胶达到平衡溶胀时的质量, kg; m_0 为室温硫化硅橡胶的原始质量, kg; w 为溶胀前硫化胶的橡胶质量分数。

氨气气氛下用甲苯测量化学交联密度 N_2 时, 在干燥器的下层放上盛有浓氨水的烧杯, 上层放装有甲苯和样条的培养皿, 干燥器为氨气所饱和。剩下的步骤同用甲苯测量硅橡胶交联密度的步骤。

2 结果与讨论

2.1 KH550 份数对室温硫化硅橡胶力学性能的影响

表 1 列出了 KH550 份数对室温硫化硅橡胶力学性能的影响。

表 1 KH550 份数对室温硫化硅橡胶力学性能的影响

Table 1 Effect of the content of KH550 on the mechanical properties of RTV silicone rubber

KH550 份数	邵 A 硬度	拉伸强度/MPa	断裂伸长率/%
0	33 ± 1	1.11 ± 0.06	117 ± 6
2	35 ± 1	1.12 ± 0.06	119 ± 6
4	43 ± 2	1.67 ± 0.08	130 ± 6
6	51 ± 2	1.79 ± 0.09	170 ± 9
8	50 ± 2	1.17 ± 0.06	94 ± 5
10	41 ± 1	0.72 ± 0.04	62 ± 3

由表中数据可以看出, 随着 KH550 份数的增加, 硅橡胶的拉伸强度、断裂伸长率以及邵 A 硬度均先增加后减小, 并在 KH550 份数为 6 份的时候达到最大值。这是因为无机填料 SiO₂ 与硅橡胶结构相容性好, 加上 SiO₂ 本身具有很高的比表面积, 与聚合物基体的结合面积非常大, 界面结合好。刚性 SiO₂ 纳米粒子一方面可以产生应力集中而引发周围橡胶产生银纹, 吸收能量, 另一方面, 其本身能阻止和钝化银纹, 这决定了纳米 SiO₂ 能增强增韧室温硫化硅橡胶, 并且两相间作用越强, 增强增韧作用越明显^[6]。硬度是材料刚性的表现, SiO₂ 纳米刚性粒子是硅橡胶刚性的主要来源, 故硅橡胶的刚性与两相的界面性能呈正相关。当 KH550 份数小于 6 份时, 偶联剂主要用于改善填料的分散性, 白炭黑与硅橡胶的界面性能越好, 增强增韧效果越明显, 力学性能随 KH550 的加入量增加而增加。当 KH550 份数大于 6 份后, 过多的偶联剂在体系中充当交联剂的角色, 首先与苯基硅橡胶的端羟基反应, 使 TEOS 可参与的反应交联点减小, 化学交联密度减少, 导致室温硫化硅橡胶力学性能的降低^[6-7]。

2.2 KH550 份数对室温硫化硅橡胶形貌的影响

图 1 列出了不同份数 KH550 硅橡胶的拉伸断面 SEM 照片。

由图可知, 当加入 KH550 为 0 份时, 硅橡胶拉伸断面较为平整, 断面褶皱结构少, SiO₂ 团聚现象严重, 界面性能差。随着 KH550 份数的增加, 填料团

聚的情况渐少,表明 KH550 可以有效的增加两相的界面结合力。对比图 1(a),(b)中填料团聚少,图(c)中基本没有发现白色的团聚 SiO_2 , 并且明显的图(c)中表面更加粗糙。当 KH550 份数为 6 份时(图 1(d)), SiO_2 分散均匀,未发现团聚现象,拉伸断面上褶皱结构较多,两相间界面性能较好,力学性能

较好。相比 6 份 KH550 时,图 1(e)中硅橡胶断面呈块状,图 1(f)中有明显的粒状物出现,并且两者都可观察到白色 SiO_2 ,其可能是填料团聚严重引起的两相结合力差,界面性能差^[8-9]。这与 2.1 节力学性能相关,可以印证 KH550 加入量在 6 份时是合适的。

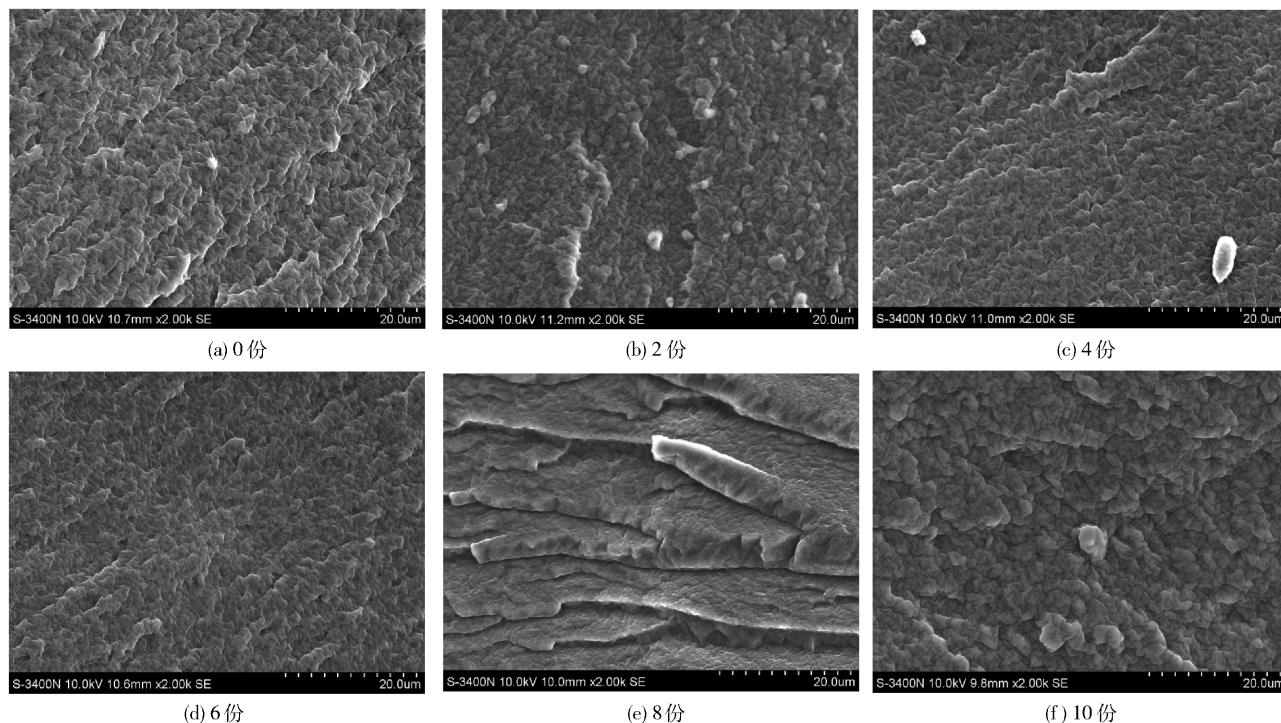


图 1 不同 KH550 份数硅橡胶的拉伸断面扫描电镜图

Fig.1 SEM micrographs of RTV silicone rubber tensile fracture with different contents of KH550

2.3 KH550 份数对室温硫化硅橡胶交联密度的影响

由于存在分子链的网络结构,高聚物在溶剂中只能被溶胀。溶胀过程中,随着良溶剂进入分子链的同时,高聚物网络结构被撑开,分子链伸展,这时将产生将溶剂挤出网络结构的弹性收缩力。当良溶剂进入网络结构的压力等于弹性收缩力时,溶剂的溶胀达到平衡,高聚物的重量不再发生变化。因为存在平衡,最大溶胀与高聚物的交联密度有关,故可采用测量平衡溶胀时高聚物的质量变化来表征高聚物的交联密度^[10-11]。

表 2 为所测室温硫化硅橡胶的交联密度,可以看出,首先,硅橡胶中以化学交联为主,并且在未加入 KH550 的情况下,硅橡胶中就已经存在物理交联;其次,硅橡胶的总交联密度 N_1 随 KH550 份数的增加而增加,但变化并不明显,而化学交联 N_2 与总交联密度 N_1 的比值 N_2/N_1 却呈现出一定的规律:

随着 KH550 加入量的增加,化学交联密度比值 N_2/N_1 先增加后减小,并且在 KH550 份数为 6 时达到最大值 0.773;物理交联密度比值 N_3/N_1 呈现出相反的规律。

表 2 KH550 份数对室温硫化硅橡胶交联密度的影响
Table 2 Effect of the content of KH550 on the cross-linking density of RTV silicone rubber

KH550 份数	N_1	N_2/N_1	N_3/N_1
0	0.29964	0.756	0.244
2	0.30281	0.764	0.236
4	0.30398	0.766	0.234
6	0.30771	0.773	0.227
8	0.31678	0.772	0.228
10	0.31917	0.764	0.236

联系 2.1 节力学性能,硅橡胶中化学交联占总交联密度的比值 N_2/N_1 与 KH550 份数的变化规律

和力学性能与 KH550 份数的变化规律一致。这可能是因为当 KH550 加入量较少时, KH550 与 TEOS 用量比较小, KH550 与 TEOS 水解产物反应生成化学交联结构, 这在减少硅橡胶中硅醇与 SiO_2 中羟基形成的氢键数目的同时, 增大了硅橡胶中化学交联密度比例, 进而提高了硅橡胶的力学性能。而当 KH550 加入量增多时, 总交联密度虽然有所增加, 但是过多的 KH550 却使得化学交联反应减少, 导致

了力学性能的降低^[6-7]。

由上述分析可知, 硅烷偶联剂 KH550 参与反应, 一方面是 KH550 水解成硅醇, 与交联剂 TEOS 的水解产物反应, 参与室温硫化硅橡胶的化学交联。另一方面由于 SiO_2 表面中存在大量的羟基, KH550 中的伯氨基可与之生成氢键, 实现 SiO_2 与交联网络的桥接, 增强硅橡胶的界面性能。具体反应如图 2 所示。

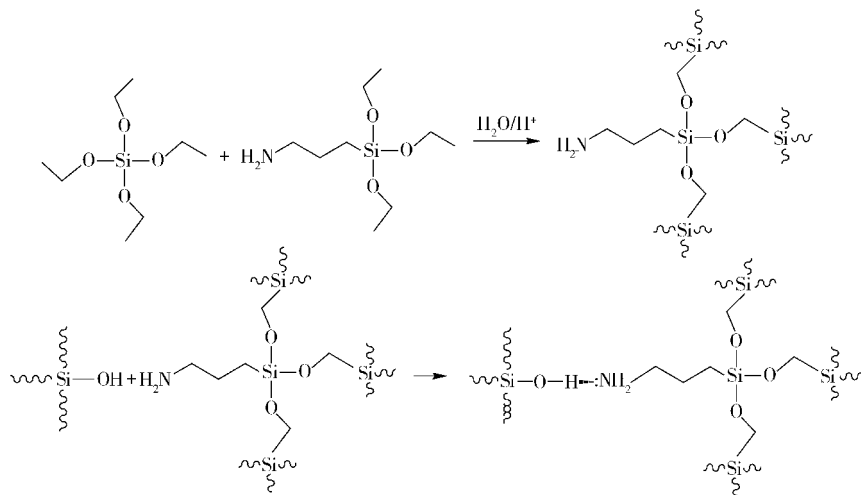


图2 KH550 参与反应示意图

Fig. 2 Mechanism of silane coupling agent KH550 participated in reaction

2.4 KH550份数对室温硫化硅橡胶热性能的影响

2.4.1 低温性能

图3和图4为不同 KH550 份数下室温硫化硅橡胶 DSC 和 DMA 曲线, 表3为室温硫化硅橡胶的玻璃化转变温度 T_g 。

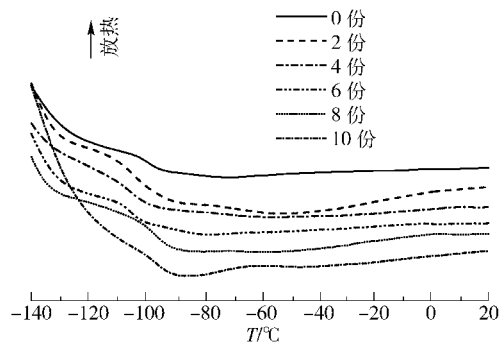


图3 不同 KH550 份数室温硫化硅橡胶 DSC 曲线

Fig. 3 DSC curves of RTV silicone rubber filled with different contents of KH550

从表中可以观察到随着偶联剂 KH550 份数的增加, DSC 所测 T_g 和 DMA 所测 T_g 互相印证, 均呈现先减小后增大的变化, 并且在当 KH550 份数为 6 份的时候, 硅橡胶的 T_g 达到最小。这可能是因为随着

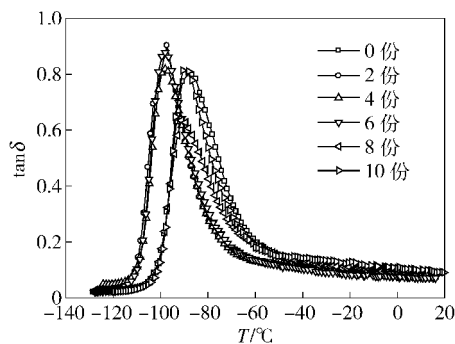


图4 不同 KH550 份数室温硫化硅橡胶 DMA 曲线

Fig. 4 DMA curves of RTV silicone rubber filled with different contents of KH550

KH550 份数的增加, 物理交联密度比例先减小后增大。同时, 当物理交联密度比例越大, 由于氢键作用, 分子链旋转越困难, 分子链刚性越大, T_g 越大, 反之 T_g 越小^[12]。

2.4.2 高温性能

图5是不同 KH550 份数下室温硫化硅橡胶的 TGA 曲线, 图6是相对应的 DTG 曲线, 表4是从图5、图6中得到的热重分析数据。

从图表中数据可知, 对比不添加 KH550 的室温

表 3 KH550 份数对室温硫化硅橡胶
玻璃化转变温度的影响

Table 3 Effect of the content of KH550 on T_g of
RTV silicone rubber

KH550 份数	$T_g/^\circ\text{C}$	
	DSC	DMA
0	-99.1	-90.0
2	-104.0	-97.8
4	-104.5	-98.1
6	-105.1	-98.3
8	-96.2	-90.2
10	-95.5	-89.6

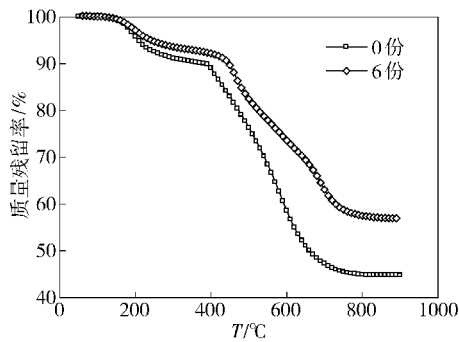


图 5 氮气气氛下不同 KH550 份数室温硫化硅橡胶
的 TGA 曲线

Fig.5 TGA curves of RTV silicone rubber filled with different
contents of KH550 obtained in a nitrogen atmosphere

硫化硅橡胶,添加了 KH550 的室温硫化硅橡胶的起始失重温度从 161.73 $^\circ\text{C}$ 增加到 167.6 $^\circ\text{C}$,失重 5% 时温度从 207.92 $^\circ\text{C}$ 上升到 242.72 $^\circ\text{C}$,失重 40% 时温度从 592.82 $^\circ\text{C}$ 上升到 729.4 $^\circ\text{C}$,900 $^\circ\text{C}$ 时的残重也从 44.74% 上升到 56.89%,可知 KH550 的加入可以提高室温硫化硅橡胶的耐热性。这可能是因为随着温度的增加,氢键打开,物理交联密度比例减

少,而 KH550 的加入有效提高了硅橡胶中化学交联密度的比例,改善了硅橡胶耐热性^[13]。

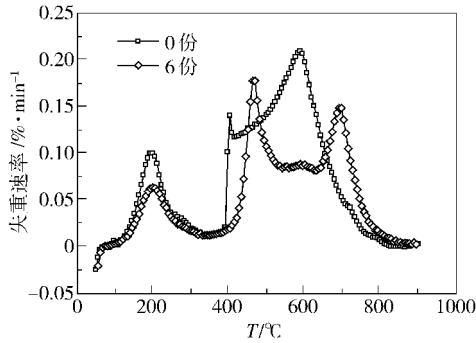


图 6 氮气气氛下不同 KH550 份数室温硫化硅
橡胶的 DTG 曲线

Fig.6 DTG curves of RTV silicone rubber filled with different
contents of KH550 obtained in a nitrogen atmosphere

从图 6 和表 4 中可以看出,室温硫化硅橡胶分别在 200 $^\circ\text{C}$ 左右、500 $^\circ\text{C}$ 左右以及 600 $^\circ\text{C}$ 左右出现峰值,表明硅橡胶的降解主要为三阶段进行。第一阶段的降解在 200 $^\circ\text{C}$ 左右,主要是由于硅橡胶主体材料端羟基苯基硅橡胶制备过程中所含的原料甲基苯基二氯硅烷(沸点为 205 $^\circ\text{C}$)降解所产生^[14],该阶段的失重在 4% 左右。第二阶段的降解发生在 500 $^\circ\text{C}$ 左右,主要是因为硅橡胶中的主体材料端羟基苯基硅橡胶中所带的端羟基产生的,端羟基对有机硅材料热稳定性的影响主要是通过羟基与主链硅氧键结构的“回咬”反应产生的^[15],其引发的“解扣式”主链降解过程示意图见图 7(a)所示。第三阶段的降解发生在 600 $^\circ\text{C}$ 左右,这是硅橡胶硅氧主链的断裂和重排反应,其机理是因为硅氧主链中硅原子的 3d 空轨道与氧原子的未共用电子对配位,在高温下致使硅氧主链断裂和重排,引发“重排式”降解^[15],生成小分子,导致失重,其示意图见图 7(b)所示。

表 4 氮气气氛下室温硫化硅橡胶的 TGA 数据

Table 4 TGA data of RTV silicone rubber obtained in a nitrogen atmosphere

KH550 份数	$T/^\circ\text{C}$					900 $^\circ\text{C}$ 残重/%
	起始失重*	失重 5%	失重 40%	最大失重	最大失重速率时 (DTG 曲线)	
0	161.73	207.92	592.82	729.3	193.25/400.45/587.73	44.74
6	167.6	242.72	729.4	791.4	195.36/466.22/695.55	56.89

* 以失重 1% 时的温度表示

3 结 论

(1) 在硅橡胶室温硫化过程中,当 KH550 加入

少于 6 份时,通过与交联剂 TEOS 配合,参与到硅橡胶的交联反应中;当 KH550 加入量多于 6 份时,先与硅橡胶的端羟基反应,减少了 TEOS 可反应的交

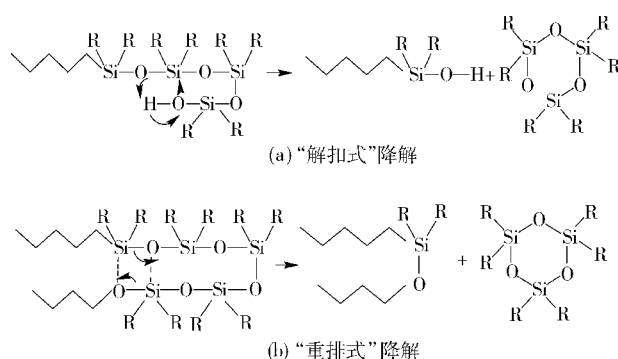


图7 室温硫化硅橡胶降解示意图

Fig. 7 Schematic illustration of RTV silicone rubber degradation

联点,导致硅橡胶力学性能的降低;当 KH550 的加入量为 6 份时,室温硫化硅橡胶有较好的力学性能,无机填料与硅橡胶有优异的界面性能。

(2) 总交联密度相近情况下,室温硫化硅橡胶中力学性能和低温性能与化学交联密度所占比例呈正相关:化学交联密度比例越大,室温硫化硅橡胶力学性能越好,玻璃化转变温度越低,低温性能越优异。

(3) KH550 的加入有助于提高硅橡胶的耐高温性能。

参考文献:

- [1] 黄应昌,吕正芸. 弹性密封胶与胶黏剂[M]. 北京:化学工业出版社,2003:270-304.
Huang Y C, Lu Z Y. Flexible sealant and adhesive[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2003: 270-304. (in Chinese)
- [2] Verwille T J. Fiber optic canister adhesive and use thereof: US, WO 90/05929A1[P]. 1990-05-31.
- [3] 黄文润. 硅烷偶联剂及硅树脂[M]. 成都:四川科学技术出版社,2010:1-18.
Huang W R. Silane coupling agent and silicone[M]. Chengdu: Sichuan Science and Technology Press, 2010: 1-18. (in Chinese)
- [4] 高正楠,江小波,郭镔. KH550 的水解工艺及其对 SiO₂表面改性的研究[J]. 北京化工大学学报:自然科学版,2012,39(2):7-12.
Gao Z N, Jiang X B, Guo K. Study of the hydrolysis of 3-aminopropyltriethoxysilane (KH550) and the surface modification of silica[J]. Beijing University of Chemical Technology: Natural Science, 2012, 39(2): 7-12. (in Chinese)
- [5] 彭娅. 纳米碳酸钙填充室温硫化硅橡胶性能及其补强

机理的研究[D]. 成都:四川大学,2004.

Peng Y. The properties and reinforcement of nano-calcium carbonate filled room temperature vulcanized silicone rubber [D]. Chengdu: Sichuan University, 2004. (in Chinese)

- [6] Chen D Z, Liu Y, Huang C. Synergistic effect between POSS and fumed silica on thermal stabilities and mechanical properties of room temperature vulcanized (RTV) silicone rubbers [J]. Polymer Degradation and Stability, 2012, 97: 308-315.
- [7] 张周达,陈雪梅,董源,等. 纳米碳酸钙-粉末橡胶复合粒子增强增韧聚氯乙烯[J]. 复合材料学报,2012,29(6):19-25.
Zhang Z D, Chen X M, Dong Y, et al. Nano-CaCO₃ filled powdered rubber composite particles reinforcing and toughening polyvinyl chloride [J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2012, 29(6): 19-25. (in Chinese)
- [8] Chen D Z, Yi S P, Wu W B, et al. Synthesis and characterization of novel room temperature vulcanized (RTV) silicone rubbers using Vinyl-POSS derivatives as cross linking agents[J]. Polymer, 2010, 51: 3867-3878.
- [9] 马文石,邓帮君. 纳米功能化石墨烯/室温硫化硅橡胶复合材料的制备与表征[J]. 复合材料学报,2011,28(4):40-45.
Ma W S, Deng B J. Preparation and characterization of nano functionalized graphene/room temperature vulcanized silicone rubber composites[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2011, 28(4): 40-45. (in Chinese)
- [10] 励杭泉,张晨. 聚合物物理学[M]. 北京:化学工业出版社,2007:91-95.
Li H Q, Zhang C. Polymer physics[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2007: 91-95. (in Chinese)
- [11] Ramli M R, Othman M B H, Arifin A, et al. Cross-link network of polydimethylsiloxane via addition and condensation (RTV) mechanisms. Part I: Synthesis and thermal properties [J]. Polymer Degradation and Stability, 2011, 96: 2064-2070.
- [12] 姚雪丽,马晓燕,陈芳,等. SiO₂/氰酸酯纳米复合材料的力学性能和热性能[J]. 复合材料学报,2006,23(3):54-59.
Yao X L, Ma X Y, Chen F, et al. Mechanical and thermal properties of SiO₂/cyanate ester nano-composites [J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2006, 23(3): 54-59. (in Chinese)
- [13] 赵培仲,王源升,朱金华,等. 聚氨酯弹性体的高弹模量对温度的依赖性[J]. 高分子材料科学与工程,2008,24(4):89-92.

- Zhao P Z, Wang Y S, Zhu J H, et al. Temperature dependence of plateau modulus of polyurethane elastomer [J]. *Polymer Materials Science & Engineering*, 2008, 24(4): 89–92. (in Chinese)
- [14] 于永明. 羟烷基聚硅氧烷热降解反应动力学的理论研究[D]. 济南: 山东大学, 2006.
- Yu Y M. Theoretical studies on the kinetics of thermal degradation of hydroxylalkylpolysiloxanes [D]. Jinan: Shandong University, 2006. (in Chinese)
- [15] 来国桥. 高性能含甲基苯基硅氧链节有机硅材料的研究及应用[J]. *精细与专用化学品*, 2008, 16(11): 22–27.
- Lai G Q. Research and application of the high-performance silicone containing methyl phenyl silicon-oxygen chain materials [J]. *Fine and Specialty Chemicals*, 2008, 16(11): 22–27. (in Chinese)

A cross-linking density method study of the effect of a silane coupling agent on the performance of room temperature vulcanized (RTV) silicone rubber

SU QingFu YANG Yu LI Gang YANG XiaoPing

(State Key Laboratory of Organic-Inorganic Composites, College of Materials Science and Engineering,
Beijing University of Chemical Technology, Beijing 100029, China)

Abstract: The cross-linking density method was used to investigate the effects of a coupling agent on the mechanical properties and the high and low temperature performance of silica-enhanced hydroxyl-terminated phenylsiloxane rubber. Mechanical properties, SEM, cross-linking density, DSC, DMA, and TGA analysis all showed that the chemical cross-linking density ratio was the greatest when the mass fraction of γ -aminopropyltriethoxysilane (KH550) was 6 parts per hundreds of hydroxyl-terminated phenylsiloxane rubber, which resulted in room temperature vulcanized silicone rubber with the highest tensile properties, as well as the optimum interface adhesion between silica and the silicone rubber. Meanwhile, the lower glass transition temperature, which resulted from the decrease in the physical cross-linking density ratio, indicated the improvement of the low temperature resistance of the silicone rubber. The increase in the chemical cross-linking density ratio showed that the heat resistance of RTV silicone rubber was improved.

Key words: hydroxyl-terminated phenyl siloxane rubber; silane coupling agent; silica; equilibrium swelling method; mechanism