

# بررسی اثر نوع دوده بر خواص ویسکوالاستیک آمیزه‌های الاستومری

## Effect of Carbon Black Type on Viscoelastic Properties of Elastomeric Compounds

فرود عباسی سورکی<sup>\*</sup>، صدیقه سلطانی

تهران، پژوهشگاه پلیمر و پتروشیمی ایران، پژوهشکده فرایند، گروه لاستیک، صندوق پستی ۱۴۹۶۵/۱۱۵

دریافت: ۸۲/۵/۱، پذیرش: ۸۲/۱۰/۱۳

### چکیده

پاسخ آمیزه‌های لاستیکی به تنش (کرنش) وارد شده بر آنها، علاوه بر خواص ویسکوالاستیک لاستیک پایه، به مواد افزودنی آن نیز بستگی دارد. از جمله این مواد، دوده است که روی خواص ویسکوالاستیک آمیزه حاصل بشدت اثر می‌گذارد. در این پژوهش، آمیزه لاستیک SBR۱۵۰۲ پر شده با دوده‌های مختلف در مخلوطکن داخلی هکه تهیه و آزمونهای مورد نیاز، با استفاده از دستگاه تجزیه‌گر فرایند لاستیک (RPA ۲۰۰۰) انجام شده و پارامترهای ویسکوالاستیک این آمیزه پر شده با دوده‌های مختلف شامل مدول ذخیره، مدول اتلاف و  $\tan\delta$  با تغییرات کرنش بررسی شده است. نتایج آزمونها نشان می‌دهد که دوده‌های با اندازه ذرات ریزتر، قدرت تقویت‌کنندگی بیشتری دارند. اما، این ویژگی بشدت به میزان کرنش وارد شده وابسته است و افت مدول با کرنش برای این نوع دوده‌ها شدیدتر از دوده‌های با اندازه ذرات درشت‌تر است.  $\tan\delta$  برای دوده‌های مختلف با افزایش کرنش زیاد شده و برای دوده‌های با ذرات ریزتر مقدار کمتری نسبت به دوده‌های نوع درشت‌تر نشان می‌دهد. با استفاده از معادله اصلاح شده اینشتین-گات-گلد مدول نظری آمیزه‌های پر شده با دوده‌های مختلف بدست آمد.

### واژه‌های کلیدی

ویسکوالاستیک، دوده،  
کرنش، مدول ذخیره،  
مدول اتلاف

### مقدمه

افزایش پسماند و گرما در قطعه‌های لاستیکی وولکانیده می‌شود. میزان تغییر در خواص ویسکوالاستیک و گرمای ایجاد شده به نوع و مقدار دوده مصرفی بستگی دارد. دو ویژگی مهم دوده، ساختار و اندازه ذرات آن اثر بسزایی در میزان تقویت‌کنندگی آن دارند. ذرات دوده

دوده از جمله پرکننده‌های تقویت‌کننده است که در صنعت لاستیک، بویژه در صنعت تایر اثر حیاتی دارد. افزودن دوده به لاستیک از یک طرف باعث بهبود خواص مکانیکی مثل استحکام کششی، پارگی و مقاومت سایشی و از طرف دیگر موجب تغییر خواص ویسکوالاستیک و

### Key Words

viscoelastic, carbon black,  
strain, storage modulus,  
loss modulus

جدول ۲- انواع دوده و مشخصات آنها.

نوع دوده	مشخصه	جذب DBP (cm <sup>3</sup> /۱۰۰g)	سطح (cm <sup>2</sup> /g)
N ۲۲۰		۱۱۴	۱۲۶
N ۳۳۹		۱۲۳	۸۹
N ۳۳۰		۱۰۲	۸۷
N ۵۵۰		۱۱۵	۴۲
N ۶۶۰		۹۱	۳۲
سیلیکا		۱۸۰	۱۶۵

محصول شرکت ملی پتروشیمی ایران، دوده‌های N۲۲۰، N۳۳۰، N۳۳۹، N۵۵۰ و N۶۶۰ از شرکت ایران تایر و روغن از نوع نفتنی، ZnO، استئاریک اسید و ضد اکسندة TMQ طبق جدول ۱ استفاده شده است. در تمام آمیزه‌های تهیه شده میزان دوده ثابت و برابر ۵۰phr بوده است. در جدول ۲ انواع دوده و مشخصات آنها آمده است.

### دستگاهها

از مخلوط کن داخلی هکه (Haake) برای تهیه آمیزه‌ها و از دستگاه RPA۲۰۰۰ (rubber process analyzer) برای اندازه‌گیری خواص ویسکوالاستیک آمیزه‌های لاستیک استفاده شده است.

RPA۲۰۰۰ یک دستگاه دینامیکی چرخشی است که برای آزمایش مواد بسیار گرانبه و مثل لاستیکهای پر شده بکار می‌رود. این دستگاه از دو حدیده مخروطی شکل شیاردار تشکیل شده است، که به همراه دو لاستیک درزگیر یک محفظه بسته را تشکیل می‌دهند (شکل ۱). حدیده پایین می‌تواند به حالت چرخشی با یک فرکانس و کرنش معین نوسان کند. کنترل دما با دقت ۰/۱°C انجام می‌گیرد. دستگاه مجهز به یک کامپیوتر است که اطلاعات لازم قبل و بعد از انجام آزمون از راه آن وارد

زنجیره‌هایی به شکل انبوهه تشکیل می‌دهد که بسادگی قابل شکسته شدن نیست و ساختار اولیه دوده نامیده می‌شود. به دلیل وجود نیروهای جذب سطحی، از این زنجیره‌ها ساختار ثانویه کم و بیش بزرگی بنام کلوخه تشکیل می‌شود که به وسیله نیروهای مکانیکی و تنش اعمال شده به سمت دستگاههای اختلاط، قابل شکسته شدن است. میزان نیروهای بین ذرات پرکننده در فرایند تقویت کنندگی بسیار مهم است، زیرا باید طی تغییر شکل لاستیک حفظ شوند [۱،۲].

در این پژوهش، رفتار ویسکوالاستیک آمیزه‌های خام (فاینال) لاستیک SBR پر شده با دوده‌های مختلف را در کرنشهای دینامیکی زیاد و کم با دستگاه RPA۲۰۰۰ بررسی می‌شود و با استفاده از معادله اصلاح شده اینشتین - گات - گلد مدول نظری آمیزه‌های پر شده با دوده‌های مختلف بدست می‌آید. بررسی این پدیده می‌تواند در پیش بینی فراورش آمیزه‌های لاستیکی در سرعت‌های مختلف برش، تورم پس از حدیده و گرمای ایجاد شده در حین فرایند مفید واقع شود. توضیح این نکته لازم است که رفتار آمیزه‌های لاستیکی یخت شده با تغییرات کرنش را پژوهشگران مختلف بررسی کرده‌اند [۶-۲]. در این پژوهش، این مهم برای آمیزه‌های خام و به کمک دستگاه RPA۲۰۰۰ در تنشهای سینوسی بررسی شده است. بررسیها نشان می‌دهد که نتایج بدست آمده از دستگاه RPA۲۰۰۰ با نتایج بدست آمده از سایر دستگاههای مورد استفاده در بررسی رفتار ویسکوالاستیک، قابل مقایسه است [۷،۸].

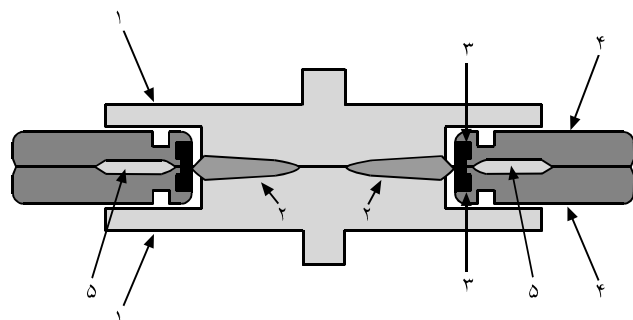
### تجربی

#### مواد

در این پژوهش، از لاستیک مصنوعی استیرن بوتادی ان (SBR۱۵۰۲)

جدول ۱- فرمولبندی آمیزه.

مقدار (phr)	مواد
۱۰۰	SBR ۱۵۰۲
۵۰	دوده
۵	ZnO
۱۰	روغن نفتنی
۱	استئاریک اسید
۱	TMQ

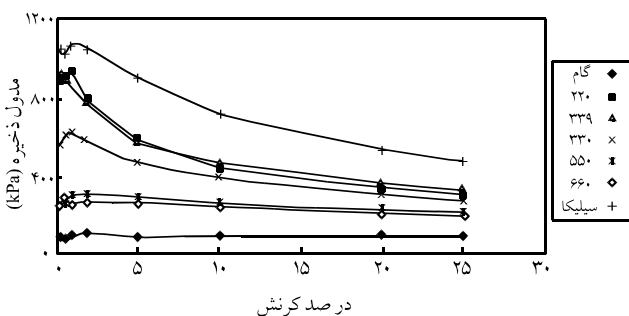


شکل ۱- سطح مقطع حدیده RPA ۲۰۰۰: (۱) حدیده، (۲) محل نمونه گذاری، (۳) درزگیرها، (۴) صفحه درزگیر و (۵) کانال عبور مواد اضافی.

مورد دوده، با وجود افت سریعتر مدول در کرنشهای کم در مقایسه با سیلیکا به دلیل قابلیت دوده در ایجاد پیوندهای فیزیکی - شیمیایی قویتر نسبت به سیلیکا با زنجیرهای لاستیک، افت کمتری در مدول مشاهده می‌شود.

شکل ۳ مدول ذخیره دینامیکی (G') آمیزه‌های خام پر شده با دوده‌های مختلف و سیلیکا و همچنین آمیزه بدون دوده را در برابر درصد کرنش نشان می‌دهد. همان‌طور که مشاهده می‌شود در کرنشها یا سرعتهای برش کم، شبکه انبوهه و شبکه کلوخه ثانویه دست نخورده باقی می‌ماند و مدول زیاد آمیزه‌ها به دلیل پاسخ الاستیک این شبکه بوده و تابعی از اندازه ذرات پرکننده است. هرچه اندازه ذرات ریزتر یا ساختار بالاتر، باشد آمیزه تهیه شده از این نوع دوده نسبت به بقیه مدول بیشتری نشان می‌دهد. در واقع، هرچه اندازه ذرات دوده ریزتر باشد چگالی شبکه انبوهه بیشتر و پیوندهای فیزیکی - شیمیایی بیشتری بین این ذرات و زنجیرهای پلیمر ایجاد می‌شود. این پیوندها نقش اصلی را در تقویت آمیزه‌های لاستیک پر شده بازی می‌کنند. در کرنشهای کم نیز به دلیل حفظ پیوندهای یاد شده و همچنین تخریب نشدن شبکه دوده، استحکام بیشتری در برابر کرنش اعمال شده ایجاد و بنابراین، مدول آمیزه بیشتر می‌شود [۳،۴].

اشاره می‌شود که اثر دوده بر خواص ویسکوالاستیک آمیزه‌های لاستیکی علاوه بر نوع دوده به مقدار دوده در آمیزه نیز بستگی دارد. مقدار دوده باید به حدی باشد که تشکیل شبکه انبوهه را ممکن سازد. با افزایش میزان کرنش (حدود ۲/۵ درصد به بالا)، افت مدول در کلیه منحنیها مشاهده می‌شود. بدیهی است که افزایش میزان کرنش، پیوندهای فیزیکی - شیمیایی بین ذرات دوده - لاستیک و بویژه شبکه دوده را با تخریب بیشتری مواجه و مدول افت می‌کند. در کرنشهای زیاد، به دلیل حرکت‌های گرانشی زنجیرهای پلیمر بر سطح ذرات دوده، انرژی وارد شده به گرما تبدیل می‌شود و سیستم تغییرشکل نشان



شکل ۳ - تغییرات مدول ذخیره آمیزه پر شده با دوده‌های مختلف با کرنش در دمای ۱۰۰°C و فرکانس ۶cpm.

و خارج می‌گردد. برای انجام آزمون، مقدار ۴ تا ۶ cm<sup>۳</sup> از آمیزه خام در محفظه یاد شده قرار داده می‌شود و با پایین آمدن حدیده بالا، محفظه بسته و نمونه در فشار ۴MPa قرار می‌گیرد. پس از انجام آزمون حدیده‌ها باز شده و نمونه خارج می‌گردد. در مقایسه با سایر دستگاه‌های تعیین خواص ویسکوالاستیک، در RPA۲۰۰۰ آماده‌سازی، نمونه‌گذاری و خارج کردن نمونه سریعتر انجام می‌گیرد.

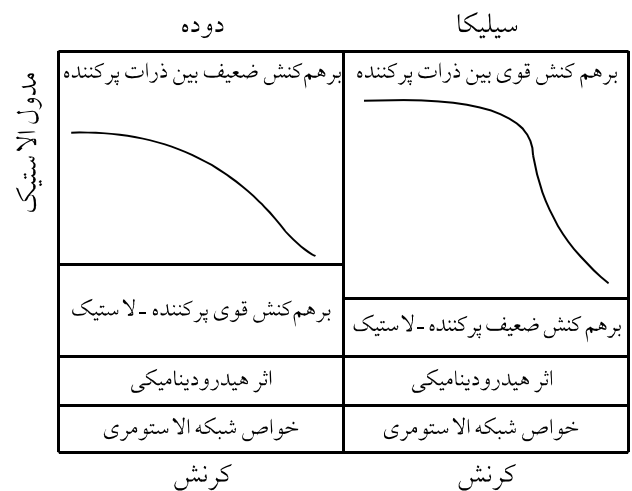
## روش

برای تهیه آمیزه‌ها طبق استاندارد ASTM ۳۱۹۱ عمل شد. اختلاط با سرعت ۴۰rpm و آزمون تعیین خواص ویسکوالاستیک در دمای ۱۰۰°C، فرکانس ۶cpm و کرنش متغیر انجام شد.

## نتایج و بحث

### مدول ذخیره و مدول اتلاف

بطور کلی افزودن پرکننده‌های فعال به سیستم‌های الاستومری اثرهای متفاوتی بر مدول دارد. در شکل ۲ نمایی از این اثرها برای دوده و سیلیکا نشان داده شده است. به دلیل قابلیت تشکیل پیوندهای هیدروژنی بین ذرات در تقویت کننده‌های سیلیسی، برهم کنش این ذرات نسبت به برهم کنش ذرات دوده با یکدیگر قویتر است. به همین دلیل، در کرنشهای کم آمیزه مدول بیشتری را نسبت به مدول آمیزه‌های دارای دوده نشان می‌دهد. با افزایش میزان کرنش، در یک کرنش معین شبکه ایجاد شده بین ذرات پرکننده بسرعت تخریب می‌شود، در حالی که در



شکل ۲ - مفهوم تقویت کنندگی از نظر غلظت [۹،۱۰].

افزایش می‌یابد و در واقع تخریب ساختار ثانویه دوده بیشتر انجام می‌گیرد، به گونه‌ای که انرژی لازم برای تغییر شکل آمیزه کاهش می‌یابد و بنابراین اتلاف کمتری نیز انجام می‌گیرد.

### tan δ

یک کرنش متوسط در آمیزه لاستیکی منجر به اختلاف فاز بین تنش و کرنش اعمال شده می‌گردد. این پدیده به دلیل ماهیت ویسکوالاستیک آمیزه‌های لاستیکی است. تنازنت اختلاف فاز یاد شده برابر است با:

$$\tan \delta = G''/G' \quad (1)$$

که  $G'$  را مدول ذخیره و  $G''$  را مدول اتلاف می‌نامند.  $\delta$  همان اختلاف فاز بین  $G'$  و  $G''$  ( $G^* = G' + iG''$ ) است که معیاری از پسماند نشان داده شده به وسیله لاستیک است.

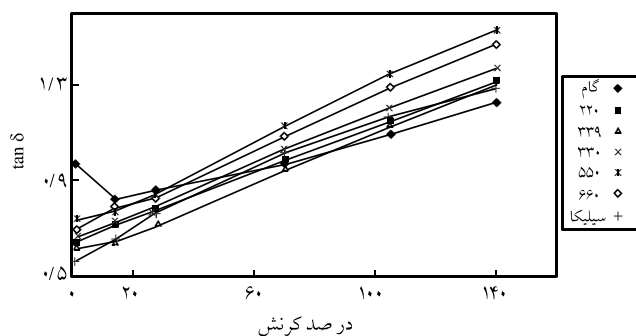
بررسی‌های انجام شده [۱۰] نشان می‌دهد که نسبت بین شبکه دوده که قابلیت شکست و تشکیل مجدد دارد و بخشی از شبکه دوده که تحت کرنش بدون تغییر می‌ماند، پارامتر اثر گذار بر  $\tan \delta$  است.

شکل ۵ تغییرات  $\tan \delta$  را برای دوده‌های مختلف و آمیزه بدون دوده و همچنین آمیزه پر شده با پرکننده سیلیسی نشان می‌دهد. همان گونه که در این شکل مشاهده می‌شود در کرنشهای کم،  $\tan \delta$  برای آمیزه‌های پر شده نسبت به آمیزه‌های بدون پرکننده کمتر است. این پدیده می‌تواند به دلیل پیوندهایی باشد که دوده یا هر گونه پرکننده فعال دیگر با زنجیر لاستیک ایجاد می‌کند. در کرنشهای کم، تنش لازم برای شکستن این پیوندها وجود ندارد و بنابراین حرکات گرانی و تلف کننده انرژی در سطح دوده انجام نمی‌گیرد. با افزایش کرنش،  $\tan \delta$  برای آمیزه‌های دارای دوده نسبت به آمیزه‌های بدون دوده افزایش می‌یابد. این امر می‌تواند به دلیل پیوندهای فیزیکی - شیمیایی بین دوده و زنجیرهای

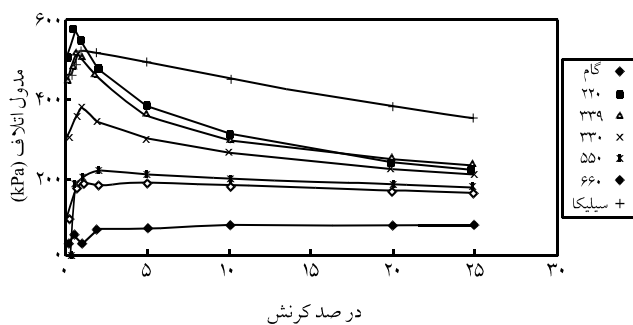
می‌دهد. هرچه ساختار دوده بالاتر باشد، تمرکز تنش بر ذرات این نوع دوده بیشتر است و بنابراین افت مدول بیشتری برای این دوده‌ها مشاهده می‌شود [۳]. با توجه به برهم کنش قویتر ذرات سیلیکا نسبت به ذرات دوده، که به دلیل قطبیت و قابلیت تشکیل پیوندهای هیدروژنی است، اثر افزایش کرنش و افت مدول نسبت به دوده کمتر مشاهده می‌شود.

بطور کلی، رفتار آمیزه‌های لاستیکی در کرنشهای زیاد شبیه یک سیستم رقیق شده است که توزیع پراکندگی یکنواختی از دوده در آن وجود دارد، به گونه‌ای که میزان دوده در حجم کاهش می‌یابد و انبوه‌ها از هم جدا می‌شوند. در این حالت اثر دوده بر مدول دینامیکی، معادل با اثر هیدرو دینامیکی کره‌های مجزا بر ماتریس لاستیک و مستقل از اندازه ذرات است و به ساختار دوده بستگی دارد. با افزایش کرنش اعمال شده، منحنی مدول دینامیکی ذخیره انواع مختلف دوده، به سمت مقدار معینی ( $G'_\infty$ ) میل می‌کند. تفاوت بین  $G'_0$  و  $G'_\infty$  برای لاستیکهای تقویت شده با دوده، بدون شک به دلیل شکست و تشکیل مجدد ساختار انبوه‌های دوده است.  $G'_\infty$  برای لاستیکهای دارای دوده بیشتر از  $G'_0$  برای آمیزه بدون دوده است ( $G'_g$ ). بخشی از این تفاوت مدول ناشی از وجود پرکننده در آمیزه و به دلیل اثر هیدرو دینامیکی ذرات توزیع شده دوده در ماتریس لاستیک است. مقادیر پیش بینی شده برای مدول از معادله هیدرو دینامیکی، که توسط پژوهشگران مختلف مثل اینشتین، گلد و گات بدست آمده است، کمتر از مقدار واقعی است [۱۱، ۲].

شکل ۴ رفتار مدول اتلاف آمیزه‌های پر شده با دوده‌های مختلف و نیز سیلیکا را با تغییرات کرنش نشان می‌دهد. همان گونه که از شکل پیداست میزان اتلاف در کرنشهای کم متناسب با انرژی وارد شده به سیستم است. به عبارت دیگر، هر چه پیوندهای بین زنجیرهای لاستیک و ذرات دوده قویتر باشد، انرژی بیشتری برای تغییر شکل شبکه دوده‌ای لازم است و به محض شکست این پیوندها انرژی اعمال شده تلف می‌شود. با افزایش کرنش، فرایند شکست و تشکیل مجدد شبکه دوده



شکل ۵ - تغییرات  $\tan \delta$  در آمیزه پر شده با دوده‌های مختلف با کرنش در دمای  $100^\circ\text{C}$  و فرکانس  $6\text{cpm}$ .



شکل ۴ - تغییرات مدول اتلاف آمیزه پر شده با دوده‌های مختلف با کرنش در دمای  $100^\circ\text{C}$  و فرکانس  $6\text{cpm}$ .

جدول ۳- پیش بینی مدول ذخیره از معادله تصحیح شده E.G.G.

نوع دوده	سطح ذرات (cm <sup>2</sup> /g)	جذب DBP (cm <sup>3</sup> /۱۰۰g)	V/φ	G <sub>p</sub> /G <sub>g</sub>	G <sub>f</sub> /G <sub>g</sub>
N۲۲۰	۱۲۶	۱۱۴	۱/۶۷	۳/۳۶	۴/۵۶
N۳۳۹	۸۹	۱۲۳	۱/۷۴	۳/۴۶	۴/۵
N۳۳۰	۸۷	۱۰۲	۱/۵۹	۳/۱۲	۳/۹۸
N۵۵۰	۴۲	۱۱۵	۱/۶۸	۳/۳۳	۲/۷۶
N۶۶۰	۳۲	۹۱	۱/۵۱	۲/۹۵	۲/۵۶

(الف) اندازه‌گیری در ۱۰۰°C، ۶cpm و کرنش ۱۰٪، (ب) φ=۰/۱۹۴۵، ۵۰phr (ج) G<sub>p</sub> مدول ذخیره پیش بینی شده از معادله تصحیح شده E.G.G.

معادله بالا بیشتر است.

با توجه به آنچه بیان شد، پارامتر غلظت حجمی C به کمک معادله اینشتین - گات - گلد به صورت زیر اصلاح شد:

$$V = \frac{0.5\phi(1 + [0.2139 (DBP)]/1.46)}{3} \quad (3)$$

که در آن V جزء حجمی مؤثر دوده و φ جزء حجمی دوده در آمیزه است. چنانچه جزء حجمی لاستیک مسدود شده در دوده برابر ۰/۵ باشد و ساختار دوده نیز لحاظ شود، با جایگزین کردن V بجای C خواهیم داشت:

$$G_f = G_g (1 + 2/5V + 14/1V^2) \quad (4)$$

که در این معادله G<sub>f</sub> و G<sub>g</sub>، به ترتیب مدول آمیزه پر شده با دوده و آمیزه خام است [۲]. براین اساس مدول پیش بینی شده برای آمیزه SBR پر شده با دوده‌های مختلف در جدول ۳ آورده شده است.

### نتیجه گیری

خواص ویسکوالاستیک آمیزه‌های خام SBR پر شده با دوده بررسی شد. در یک کرنش معین، با کاهش اندازه ذرات و افزایش ساختار دوده مدول زیاد می‌شود. در دما و فرکانس معین، tan δ با افزایش ساختار دوده و کاهش اندازه ذرات و نیز با ازدیاد میزان کرنش، کاهش می‌یابد مقادیر بدست آمده از معادله اینشتین - گات - گلد اصلاح شده برای آمیزه‌های پر شده با دوده نشان می‌دهد که هرچه قدرت تقویت کنندگی دوده بیشتر باشد تطابق مقدار نظری و تجربی کمتر می‌شود.

لاستیک در آمیزه‌های پر شده نسبت به آمیزه‌های بدون دوده باشد که انرژی بیشتری برای شکستن آنها لازم است. در حالی که در آمیزه‌های بدون دوده تنها عامل مقاوم در برابر تنش وارد شده اصطکاک بین زنجیرها، گره خوردگیهای آنها و سایر عوامل تلف کننده انرژی است که نسبت به پیوندهای فیزیکی - شیمیایی ایجاد شده بین دوده و لاستیک ضعیفتر است. بنظر می‌رسد که در محدوده کرنش مورد بررسی، به دلیل پیوندهای ضعیفتر دوده‌های درشت تر با زنجیرهای لاستیک، حرکات گرانو در سطح ذرات آنها بیش از دوده‌های ریزتر است. بنابراین، میزان اتلاف انرژی برای دوده‌های درشت تر بیشتر است. مکانیسم اتلاف انرژی می‌تواند به شکل لغزش و سرخوردن زنجیرهای پلیمر روی سطح ذرات دوده و تغییر شکل متناوب لاستیک مسدود شده در انبوهه‌های دوده باشد. هر دو فرایند بالا می‌تواند منجر به ایجاد گرمای اضافی بدون افزایش در مدول الاستیک گردد [۴،۹].

همان‌طور که در شکل ۵ نیز مشاهده می‌شود، در میزان دوده ۵۰phr و دمای ۱۰۰°C، با ازدیاد میزان کرنش، tan δ افزایش می‌یابد. بدیهی است که با افزایش میزان کرنش، پدیده‌های استهلاکی بیشتر شده و باعث اتلاف بیشتر انرژی وارد شده به لاستیک می‌گردد. بررسی بیشتر منحنیها نشان می‌دهد که در یک کرنش معین و کم، مقدار tan δ برای دوده‌های ریزتر نسبت به دوده‌های درشت تر کمتر است.

### پیش بینی مدول الاستیک با استفاده از معادله اینشتین - گات - گلد

معادله‌های زیادی برای پیش بینی اثر پرکننده بر مدول ارائه شده است، که از آن جمله می‌توان به معادله اینشتین - گات - گلد یا به اختصار معادله (E.G.G) اشاره کرد:

$$G = G_0 (1 + 1/2C + 14/1C^2) \quad (2)$$

که در آن G<sub>0</sub> مدول لاستیک خام، G مدول لاستیک پر شده و C غلظت حجمی پرکننده است. این معادله بر اساس کارهای گات و گلد و قانون گرانووی اینشتین برای ذرات کروی سخت در یک محیط مایع پیوسته بدست آمده است. این معادله بخوبی رفتار لاستیکهای پر شده را در کرنشهای کم برای دوده‌های با ساختار ساده و اندازه ذرات درشت (که سطح مخصوص آنها ۰/۰۵ تا ۰/۱ دوده‌های تقویت کننده است) پیش بینی می‌کند.

در دوده‌های با قدرت تقویت کنندگی زیاد، به دلیل غیر کروی بودن ذرات پرکننده، حجم مسدود شده لاستیک در این ذرات، عدم تحرک قطعه‌های زنجیر پلیمر در سطح دوده و از طرف دیگر چگالی شبکه دوده و ساختار ثانویه آن مقدار تجربی نسبت به مقدار نظری بدست آمده از

## مراجع

1. Eirich F.R., *Science and Technology of Rubber*, Academic, New York, USA, 339-366, 1978.
2. Medalia A.I., Effect of Carbon Black on Dynamic Properties of Rubber Vulcanizates, *Rubber Chem. Technol.*, **51**, 437-524, 1978.
3. Medalia A.I., Selecting Carbon Blacks for Dynamic Properties, *Rubber World*, **49**, 49-55, 1973.
4. Payne A.R. and Whittaker R.E., Low Strain Dynamic Properties of Filled Rubbers, *Rubber Chem. Technol.*, **44**, 440-479, 1971.
5. Medalia A.I. Elastic Modulus of Vulcanizates as Related to Carbon Black Structure, *Rubber Chem. Technol.*, **46**, 877-897, 1973.
6. Eggers H. and Schummer P., Reinforcement Mechanisms in Carbon Black and Silica Loaded Rubber Melts at Low Stresses, *Rubber Chem. Technol.*, **69**, 253-266, 1996.
7. Pawlowski H. and Dick J., Viscoelastic Characterization of Rubber with a New Dynamic Mechanical Tester, *Rubber World*, 35-41, 1992.
8. Leblanc J.L., Rubber-Filler Interactions and Rheological Properties in Filled Compounds, *Prog. Polym. Sci.*, **27**, 627-687, 2002.
9. Donnet J.B., Black and White Fillers and Tire Compound, *Rubber Chem. Technol.*, **71**, 323-342, 1998.
10. Donnet J.B., Bansal R.C. and Wang M.J., *Carbon Black, Science and Technology*, 2nd ed., Marcel Dekker, USA, 320-327, 1993.
11. Coran A.Y. and Donnet J.B., The Effect of Dispersion Quality on the Dynamic Mechanical Properties of Filled Natural Rubber, *Rubber Chem. Technol.*, **65**, 1016-1042, 1992.