

# بررسی اثر سازگار کننده سیلانی بر خواص فیزیکی و مکانیکی کامپوزیتهای الیاف خمیر کاغذ و پلی(وینیل کلرید)

Investigation of Silane Coupling Agent on Physical and Mechanical Properties of PVC/Cellulose (PVC/Pulp Paper) Fiber Composite

علیرضا شاکری\*، سیدعلی هاشمی

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

دریافت: ۸۰/۱۰/۲۴، پذیرش: ۸۱/۱۲/۲۱

## چکیده

در این پژوهش، کامپوزیتهای پلی(وینیل کلرید) با ۲۰ درصد وزنی الیاف خمیر کاغذ شیمیایی - مکانیکی تهیه و خواص مکانیکی و فیزیکی کامپوزیت بررسی شد. برای سازگار سازی PVC با الیاف خمیر کاغذ از ۷ - آمینو پروپیل تری متوكسی سیلان به عنوان جفت کننده با بکارگیری دو روش استفاده شد. در روش اول الیاف خمیر کاغذ قبل از مخلوط کردن پلیمر با جفت کننده سیلانی در دو سطح ۱ و ۲ درصد وزنی پوشش داده شد. در روش دوم جفت کننده سیلانی در دو سطح ۱ و ۲ درصد وزنی قبل از اختلاط با الیاف خمیر کاغذ روی پلیمر پیوند زده شد. پیوند خودگی الیاف خمیر کاغذ و PVC با جفت کننده سیلانی به کمک طیف‌سنجی تبدیل فوریه و سطح‌وح اتصال بین الیاف خمیر کاغذ و PVC با میکروسکوپ الکترون پویشی مورد مطالعه قرار گرفت. نتایج آزمون خواص مکانیکی نشان‌دهنده بهبود برخی از خواص مکانیکی کامپوزیت نسبت به PVC بدون الیاف است. ولی در مجاورت جفت کننده سیلانی این بهبود خواص مشهودتر است. خواص مکانیکی کامپوزیتهای که در آنها الیاف خمیر کاغذ با سیلان پوشش داده شده نسبت به کامپوزیتهای تهیه شده از پلیمر پیوند خودگه با سیلان بهتر است. نتایج نشان می‌دهد که کامپوزیت تهیه شده با ۳۰ درصد وزنی الیاف خمیر کاغذ با ۱ درصد جفت کننده سیلانی پیوند خودگه روی الیاف آن، مدول و استحکام کششی بیشتری نسبت به سایر فراورده‌ها دارد. کامپوزیت دارای ۲۰ درصد وزنی الیاف خمیر کاغذ با ۲ درصد جفت کننده سیلانی از استحکام ضربه‌ای (شکافدار) بیشتری نسبت به سایر نمونه‌ها برخوردار است. مکانیسم سازگارسازی الیاف خمیر کاغذ با پلیمر به کمک جفت کننده سیلانی پیشنهاد شده است.

## واژه‌های کلیدی

الیاف خمیر کاغذ شیمیایی - مکانیکی، پلی(وینیل کلرید)، عامل جفت کننده، ۷ - آمینو پروپیل تری متوكسی سیلان، کامپوزیت

## مقدمه

لیگنوسلولوزی عبارتند از: چگالی کم، استحکام مناسب، ارزانی، عدم سایندگی و مضر نبودن برای ماشین‌آلات و پرسنل، قابلیت فراورش به روشهای معمولی شکل‌دهی، فراوانی و قابل دسترسی بودن، عایق بودن در

استفاده از الیاف طبیعی برای تقویت پلاستیکها، زمینه‌ای رو به رشد در علوم کامپوزیتها بشمار می‌رود. یکی از این الیاف، که تاکنون کاربردهای گسترده‌ای یافته است، الیاف لیگنوسلولوزی است. ویژگیهای مهم الیاف

## Key Words

chemical-mechanical pulp paper, polyvinyl chloride, coupling agent,  $\gamma$ -aminopropyl trimethoxysilane, composite

و پلیمر انجام می شود [۴]. در روش سوم (شکل ۱ ج) قسمتی از پلیمر یا الیاف سلولوزی با عوامل جفت کننده پیوند خورده و سپس با بقیه الیاف و پلیمر مخلوط می شوند [۵]. فرایند دوم مرحله ای مناسب تر از فرایند یک مرحله ای است، زیرا مقدار عامل جفت کننده و زمان کمتری برای مخلوط کردن لازم دارد [۶].

از خمیر کاغذ شیمیایی - مکانیکی (CMP) برای تولید کاغذ روزنامه استفاده می شود. برای تهیه این خمیر کاغذ ابتدا خرد چوبهای گونه های جنگلی نظیر راش و مرز در محلول قلیابی در دمای  $120^{\circ}\text{C}$  پخته می شود. پس از خارج کردن مایع پخت، خرد چوبهای تیمار شده توسط پالایشگر به الیاف تبدیل می شود. هدف از انجام این پژوهش، تهیه کامپوزیت الیاف خمیر کاغذ شیمیایی - مکانیکی با پلی وینیل کلرید (PVC) با استفاده از جفت کننده سیلانی است. بدین منظور از الیاف پیوند خورده و پلیمر پیوند خورده با جفت کننده سیلانی برای تهیه کامپوزیت استفاده شده و خواص مکانیکی فراورده های حاصل از دو روش با هم مقایسه شده است.

## تجربی

### مواد

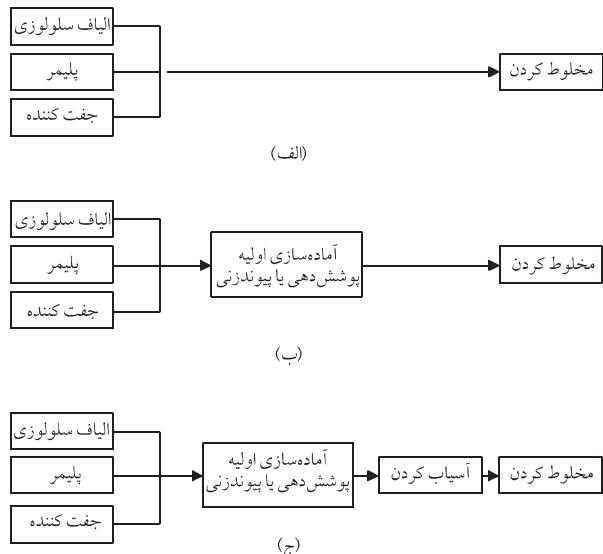
در این پژوهش، از آمیزه PVC کارخانه های گرانول سازی فزوین دارای ۳۴ درصد دی اکتیل فنالات (DOP) و با سختی  $70^{\circ}\text{Shor A}$ ، الیاف خمیر کاغذ شیمیایی - مکانیکی (CMP) با  $L/d=90$  و طول متوسط  $71\text{mm}$  ساخت کارخانه های چوب و کاغذ مازندران و جفت کننده سیلانی ۷ - آمینو پروپیل تری متوكسی سیلان A-۱۱۰۰ Fلوکای سوئیس استفاده شده است.

### دستگاهها

برای اختلاط مواد از مخلوط کن داخلی هکه مدل ۹۰ SIS و برای طیف سنجی زیر قرمز تبدیل فوریه (FTIR) از دستگاه Bruker مدل IFS ۴۸ استفاده شده است. اندازه گیری استحکام ضربه ای نمونه های شکافدار مطابق استاندارد ASTM D ۲۵۶ با دستگاه پاندولی ساخت شرکت Zwick. اندازه گیری میزان کشش مطابق استاندارد ASTM D ۶۳۸ با دستگاه Instron مدل ۶۰۲۵ و بررسی سطح نمونه ها با میکروسکوپ الکترون پویشی کمپریج مدل ۳۶۰ S انجام شد.

### روشها

الیاف خمیر کاغذ به مدت یک هفته در آون گرمایی در دمای  $90^{\circ}\text{C}$  کاملاً خشک شدند و سپس با آسیاب چکشی آزمایشگاهی آسیاب و از الک ۳۵ مش عبور داده شد. کامپوزیت الیاف خمیر کاغذ - پلی وینیل کلرید به



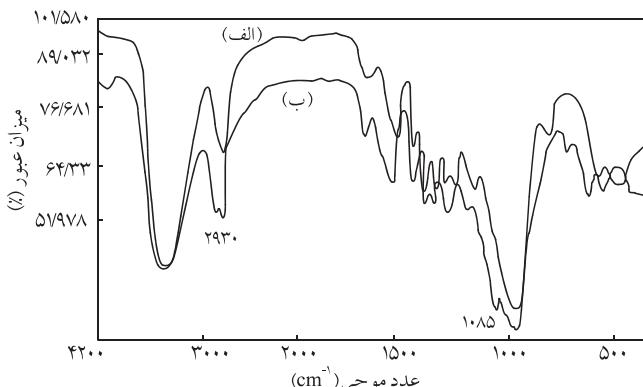
شکل ۱ - سه روش اصلی برای استفاده از جفت کننده در تهیه کامپوزیتهای الیاف چوبی - پلیمر [۲].

برابر گرما، صدا و ارتعاش. ضعفهای آنها نیز شامل ناسازگاری الیاف قطبی با فاز پلیمری غیرقطبی، تمایل به تجمع در حین فرایند و حساس بودن به رطوبت می شود که منجر به کاهش بالقوه استفاده از این الیاف در کامپوزیتهای پلیمری شده است [۱].

بیشتر گرمانرمهای موادی غیرقطبی اند که بطور طبیعی با مواد قطبی از جمله ترکیبات لیگنوسلولوزی ناسازگارند. بین مواد قطبی و غیرقطبی تنها اتصال ضعیف، نیروهای وان دروالس است. با استفاده از یک عامل شیمیایی جفت کننده می توان این نیروی وان دروالس را حداقل در یک سو به پیوند کووالانسی تبدیل کرد که منجر به اتصال قویتر بین الیاف سلولوزی و پلیمر می شود. این اتصال تحت تأثیر عوامل بسیاری قرار می گیرد. این عوامل بر حسب نوع الیاف، ماده پلیمری، روش تولید، نسبت وزنی الیاف به پلیمر، میزان ماده جفت کننده و چگونگی ناحیه تماس بین الیاف و پلیمر متغیرند [۲].

معمولًا عوامل جفت کننده بر سطح پلیمر گرمانرم یا الیاف سلولوزی پوشش داده شده یا پیوند زده می شوند. این عمل قبل یا در هنگام تهیه کامپوزیت انجام می گیرد. روشهای بسیاری برای افزایش سازگاری الیاف سلولوزی و پلیمر در مرحله توسعه و تحقیق وجود دارد، ولی معمولًا سازگارسازی به سه روش اصلی انجام می شود که در شکل ۱ نشان داده شده است.

در روش اول (شکل ۱ الف) عوامل جفت کننده بطور مستقیم روی الیاف سلولوزی یا پلیمر پیوند زده می شوند. این روش یک مرحله ای ارزان و ساده است [۳]. روش دوم (شکل ۱ ب) دو مرحله ای است و پیوند خوردنگی مواد با جفت کننده قبل از مخلوط کردن الیاف سلولوزی



شکل ۳- طیف FTIR نمونه های: (الف) الیاف خمیر کاغذ بدون سیلان و (ب) الیاف خمیر کاغذ پیوند خورده با سیلان.

گرمایی به مدت ۲۴ ساعت در دمای  $70^{\circ}\text{C}$ ، از نمونه طیف FTIR تهیه و با طیف زیر قرمز الیاف خمیر کاغذ بدون جفت کننده مقایسه شد.

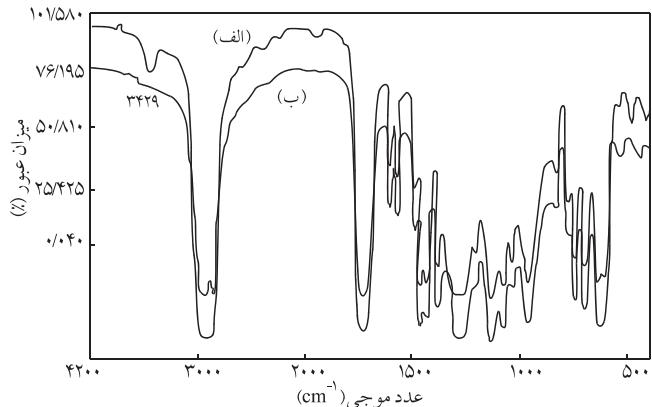
## نتایج و بحث

یک روش مطمئن و کمی برای تعیین میزان پیوند خوردگی الیاف خمیر کاغذ و پلیمر با جفت کننده سیلانی، طیف سنجی FTIR است. از مقایسه طیف FTIR پلی وینیل کلرید پیوند خورده با سیلان با طیف FTIR پلیمر خالص، پیک مربوط به گروه  $\text{N}-\text{H}$  در عدد موجی  $3429 \text{ cm}^{-1}$  در طیف نمونه تهیه شده کاملاً آشکار است (شکل ۲).

برای اثبات پیوند خوردگی الیاف خمیر کاغذ با سیلان از نمونه طیف FTIR برداشت و با طیف FTIR خمیر کاغذ بدون سیلان مقایسه شد (شکل ۳).

پیک مربوط به گروه آویزان سیلان در عدد موجی  $1085 \text{ cm}^{-1}$  در طیف FTIR نمونه تهیه شده کاملاً آشکار است. پیک مربوط به گروه  $\text{NH}_2$  به علت همپوشانی با گروه هیدروکسیل (OH) مشخص نیست، ولی پیک مربوط به ارتعاش کششی C-H مربوط به گروه پروپیل جفت کننده سیلانی در  $2930 \text{ cm}^{-1}$  قابل تشخیص است [۸].

در کامپوزیتهای الیاف خمیر کاغذ و PVC میزان تقویت کننده‌گی، استحکام و مدول کششی تابع مقدار الیاف خمیر کاغذ، درصد جفت کننده و روش تهیه نمونه است. چنانچه در جدول ۱ ملاحظه می‌شود با افزایش درصد وزنی الیاف خمیر کاغذ، چگالی کامپوزیت کاهش می‌یابد. با توجه به چگالی PVC و الیاف خمیر کاغذ (به ترتیب  $736$  و  $70$  گرم بر سانتی متر مکعب) روند کاهش چگالی کامپوزیت با افزایش مقدار الیاف منطقی بنظر می‌رسد. چگالی آمیزه‌هایی که از دو روش



شکل ۲- طیف FTIR نمونه های: (الف) پلی وینیل کلرید پیوند خورده با سیلان و (ب) پلی وینیل کلرید.

کمک مخلوط کن داخلی به صورت نمونه های  $200$  گرمی در دمای  $160^{\circ}\text{C}$  و در  $45 \text{ rpm}$  به مدت زمان  $8$  دقیقه تهیه شد.

کامپوزیت خمیر کاغذ - پلی وینیل کلرید به نسبتهاي  $80/20$  و  $70/30$  با  $1$  و  $2$  درصد وزنی جفت کننده سیلانی تهیه شد. بدین منظور الیاف خمیر کاغذ توزین و سپس ضمن مخلوط کردن روی آن سیلان به میزان  $24$  لازم پاشیده شد. سپس، این الیاف به مدت نیم ساعت در هوای آزاد و  $70^{\circ}\text{C}$  قرار گرفت تا سیلان واکنش نکرده خارج شود [۷]. آن گاه الیاف در مخلوط کن داخلی به مذاب پلیمر اضافه شد. در مرحله بعد، سیلان به میزان لازم اضافه و سپس الیاف خمیر کاغذ به مخلوط افزوده شد.

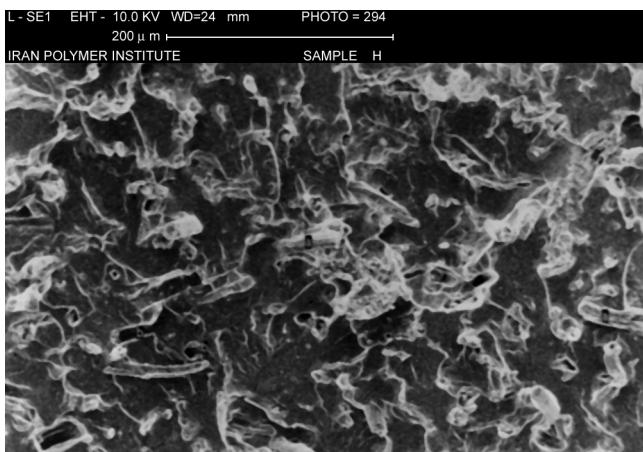
در مراحل بعدی، نمونه های بدون جفت کننده سیلانی هم تهیه شد. نمونه های موردنیاز برای آزمون خواص مکانیکی به وسیله قالبگیری تزریقی در دمای  $160^{\circ}\text{C}$  ساخته شد. چگالی کامپوزیتها مطابق استاندارد ASTM D ۲۲۴ و جذب آب آنها مطابق استاندارد ASTM D ۵۷۰ معین شد.

شاخصی عمل پیوند خوردگی پلیمر و پوشش دهی الیاف خمیر کاغذ با سیلان میزان پیوند خوردگی PVC با سیلان از مقایسه طیف FTIR فیلم نازک PVC پیوند خورده با PVC بدون جفت کننده سیلانی مشخص می‌شود. بدین منظور فیلم نازکی از آمیزه پیوند خورده به وسیله پرس داغ تهیه و سیلان پیوند نخورده با حلal استون در دستگاه رفلکس جدا شد. از فیلم یاد شده طیف FTIR گرفته شد.

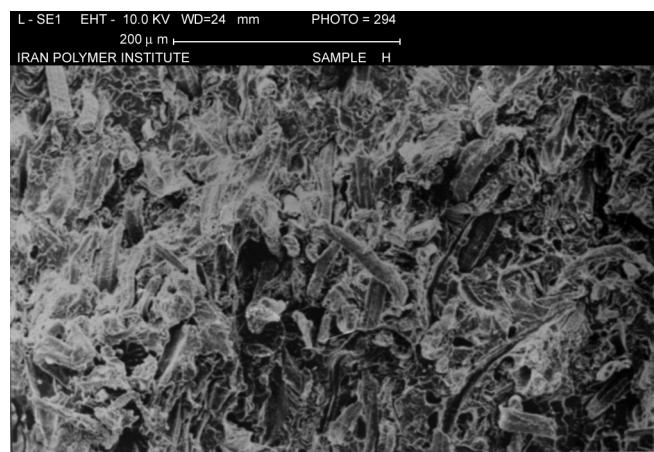
برای آشکارسازی الیاف خمیر کاغذ پوشش داده شده با سیلان، ابتدا برای خارج کردن سیلانهای پیوند نخورده، الیاف خمیر کاغذ به مدت  $24$  ساعت در آون گرمایی  $70^{\circ}\text{C}$  قرار گرفت و سپس به مدت  $8$  ساعت با حلal استون سوکسله شد و بعد از خشک شدن در آون

جدول ۱- بینخی از خواص فیزیکی و مکانیکی کامپوزیت الیاف نماینده کاغذ پلی و پلی‌پیش کلرید (اعداد داخل پرانتز نشان دهنده انحراف استاندارد است)

(الف) به روش پیشنهادی دهی الیاف با جفت کننده سپلائانی و (ب) به روش پیشنهاد خودگی پلیمر سپلائان.



شکل ۵- تصویر میکروسکوپ الکترونی از سطح شکست کامپوزیت با الیاف اصلاح شده با سیلان.



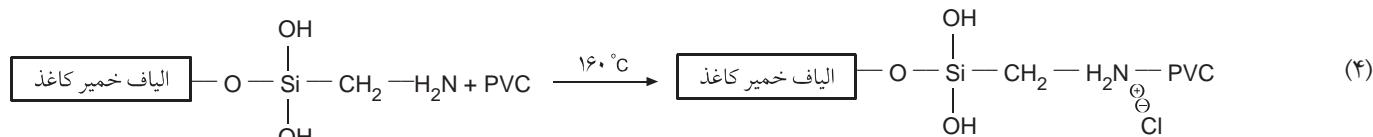
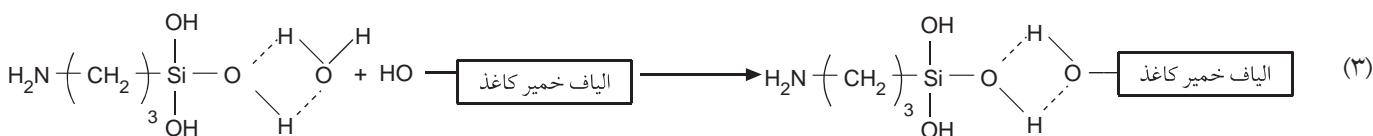
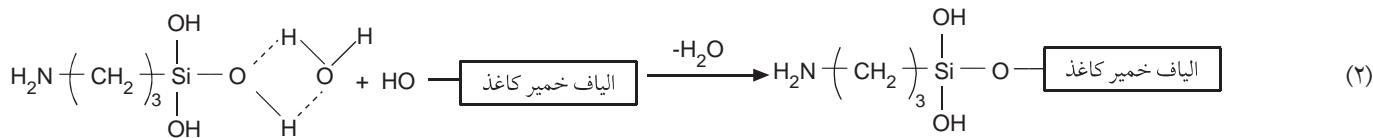
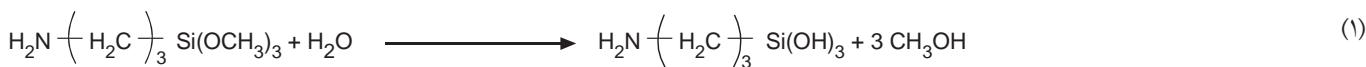
شکل ۴- تصویر میکروسکوپ الکترونی از سطح شکست کامپوزیت بدون جفت کننده سیلانی.

خمیر کاغذ و پلیمر شرکت نمی‌کنند [۲]. با افزایش درصد الیاف خمیر کاغذ، مقاومت آمیزه در برابر ضربه کاهش می‌یابد، زیرا به علت عدم چسبندگی بین الیاف، خمیر کاغذ و پلیمر فاصله ایجاد می‌شود و در نتیجه نقاط تمرکز تنش در این ناحیه افزایش پیدا می‌کند و استحکام ضربه‌ای کاهش می‌یابد. بنابراین، با افزایش درصد خمیر کاغذ نقاط تمرکز تنش بیشتر شده و فراورده حاصل در مقابل ضربه ضعیفتر می‌شود. با افزودن جفت کننده سیلانی، چون بین الیاف و سطح پلیمر اتصال و چسبندگی برقرار می‌شود، نقاط تمرکز تنش کمتر شده و الیاف به وسیله سطح پلیمر خیس می‌شوند، بنابراین مقاومت در برابر ضربه افزایش می‌یابد. همان طور که در جدول ۱ ملاحظه می‌شود، کامپوزیتهایی که الیاف آنها به وسیله سیلان پوشش داده شده‌اند، نسبت به کامپوزیتهایی که در آنها پلیمر به کمک جفت کننده سیلانی پیوند خورده است، به علت چسبندگی بیشتر بین الیاف و سطح پلیمر، استحکام ضربه‌ای بیشتری نشان می‌دهد. در شکل‌های ۴ تا ۶ سطوح شکست نمونه‌های آزمون ضربه با کمک میکروسکوپ الکترون پویشی نشان داده شده است. در شکل ۴ که مربوط به آمیزه دارای ۲۰ درصد وزنی الیاف خمیر کاغذ بدون جفت کننده است، ملاحظه می‌شود که هنگام شکست نمونه، الیاف سلولوزی به صورت سالم از خود از زمینه خارج شده‌اند. علاوه بر این، فواصل و شکافهایی در اطراف الیاف سلولوزی وجود دارد که به معنی برهم‌کنش ضعیف بین الیاف سلولوزی و زمینه PVC به دلیل نبود جفت کننده است. شکل ۵ مربوط به آمیزه دارای ۲۰ درصد وزنی الیاف خمیر کاغذ است که سطح آن با سیلان پیوند خورده است. در این تصویر اتصال نسبتاً خوبی بین الیاف خمیر کاغذ و پلیمر در اثر ماده جفت کننده

متفاوت با درصد وزنی برابر الیاف تهیه می‌شوند، تفاوت چندانی با هم ندارند.

جدول ۱ نشان می‌دهد که با افزایش درصد وزنی الیاف میزان جذب آب افزایش می‌یابد. این پدیده ناشی از آبدوستی زیاد الیاف خمیر کاغذ است. از این رو، با افزایش مقدار آن در کامپوزیت، جذب آب هم افزایش می‌یابد. از سوی دیگر، با افزودن جفت کننده سیلانی میزان جذب آب کامپوزیتها کم می‌شود. بنظر می‌رسد که جفت کننده سیلانی سبب اتصال الیاف با پلیمر می‌شود و تمایل الیاف خمیر کاغذ را به جذب آب کاهش می‌دهد. میزان جذب آب آمیزه‌هایی که از درصد آب جوش تفاوت چندانی با میزان جذب آب سرد ندارد. همچنین، با افزایش درصد الیاف خمیر کاغذ، استحکام کششی کامپوزیت نسبت به PVC افزایش می‌یابد. در مجاورت جفت کننده سیلانی، این افزایش مشهودتر است. استحکام کششی آمیزه‌هایی که از پلیمر پیوند خورده با جفت کننده سیلانی تهیه شده‌اند، کمتر از نمونه‌های تهیه شده از الیاف پیوند خورده است. علت این است که بخشی از جفت کننده سیلانی در توده پلیمر به دام افتاده و در مجاورت رطوبت و گرمابه وسیله تشکیل پیوند Si-O-Si. بین زنجیرهای پلیمر پیوندهای عرضی ایجاد می‌کند [۸].

آمیزه دارای ۳۰ درصد وزنی الیاف خمیر کاغذ پیوند خورده با ۱ درصد جفت کننده سیلانی بیشترین استحکام کششی را نسبت به سایر آمیزه‌ها دارد. بنظر می‌رسد که با افزایش درصد جفت کننده سیلانی بخشی از سیلانها روی سطح الیاف و در مجاورت رطوبت با هم واکنش داده و تشکیل محصولات فرعی مختلف می‌دهند و در اتصال بین الیاف



### مکانیسم پیوند خوردگی و اتصال خمیر کاغذ با پلیمر

براساس نتایج خواص مکانیکی و تفسیر طیف FTIR می‌توان مکانیسم اتصال بین الیاف خمیر کاغذ و PVC را با دو روش پیوندزنی سیلان به الیاف خمیر کاغذ و PVC را پیش‌بینی کرد.

**پیوندزنی سیلان به الیاف خمیر کاغذ**  
از آنجا که خمیر کاغذ دارای مقداری رطوبت باقیمانده است، در حین پوشش دهنی آن با سیلان این امکان وجود دارد که گروههای  $\text{OCH}_3$  هیدرولیز شده و تشکیل سیلانول دهنده (واکنش ۱).

گروههای هیدروکسیل می‌توانند به واسطه پیوند هیدروژنی با گروههای هیدروکسیل (OH) سلولوز یا لیگنین خمیر کاغذ اتصال برقرار کنند. همچنین، امکان تشکیل پیوند کووالانسی نیز وجود دارد نظیر چنین اتصالی را پلیدومان [۹] برای پیوندزنی جفت کننده سیلانی به الیاف شیشه‌پیشنهاد کرده است (واکنش‌های ۲ و ۳).

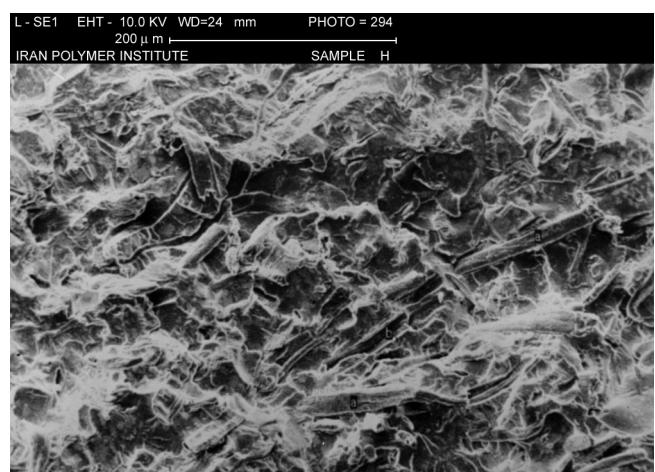
گرچه ساختار فصل مشترک خمیر کاغذ - پلیمر پیچیده است، ولی می‌توان یک ساختار فرضی ساده شیمیابی (واکنش ۴) شامل خمیر کاغذ، جفت کننده و پلیمر فرض کرد [۷].

### پیوندزنی سیلان با PVC

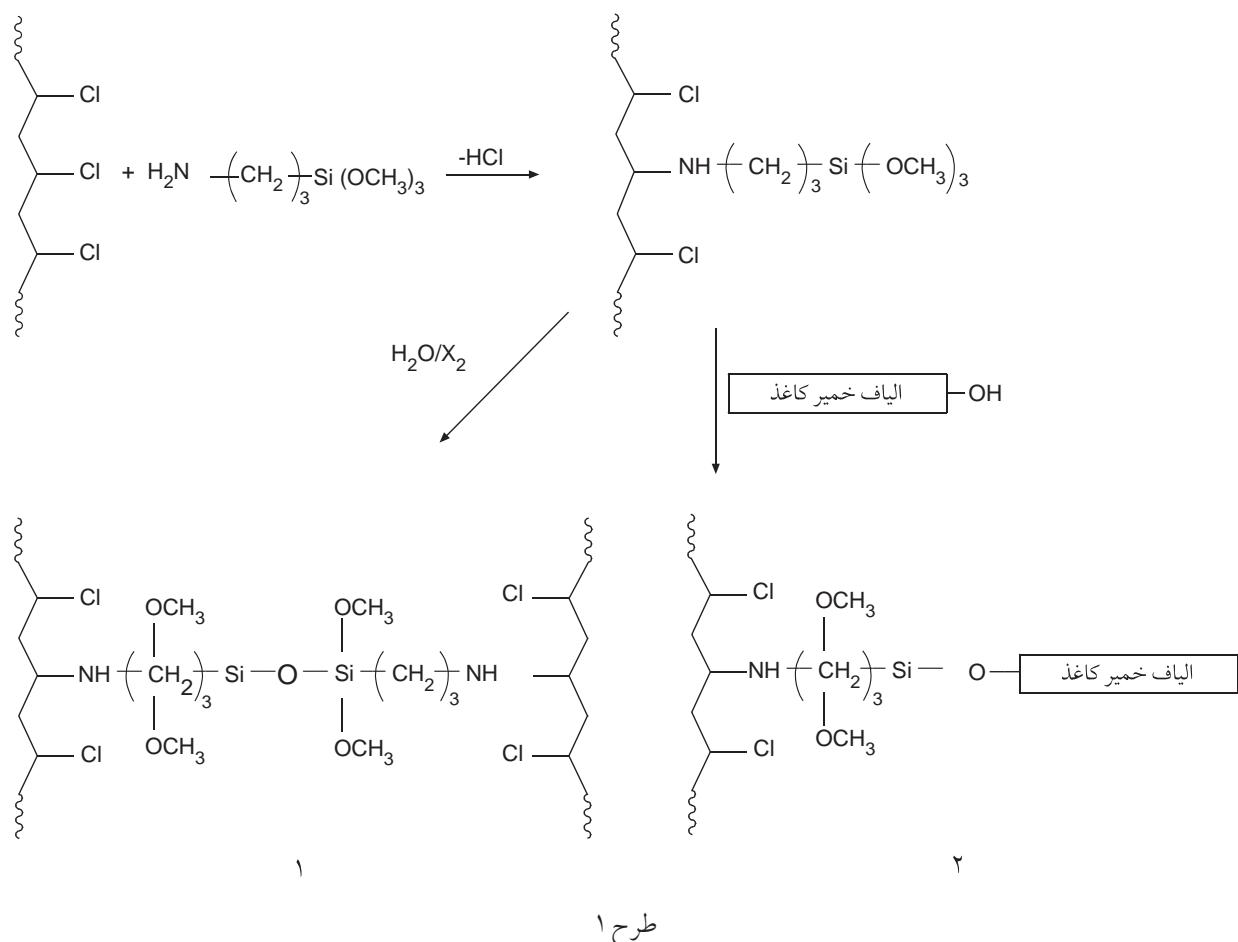
مکانیسم پیوندخوردگی PVC با آمینو سیلان توسط هیرن و همکارانش [۸] در ارتباط با شبکه‌ای کردن PVC با سیلان پیشنهاد شده است (طرح ۱) که در مجاورت رطوبت پل سیلوکسان تشکیل داده و سبب

مشاهده می‌شود.

همچنین، در ناحیه حد واسطه فاصله و عدم اتصال کمتر دیده می‌شود و عمل دربرگرفتن الیاف خمیر کاغذ به وسیله پلیمر بهتر صورت گرفته است و در اثر شکست آمیزه، الیاف هم شکسته شده‌اند. شکل ۶ مربوط به آمیزه دارای ۲۰ درصد وزنی الیاف خمیر کاغذ است که در آن پلیمر به آمیزه دارای ۲۰ درصد وزنی سیلانی پیوند خورده است. ملاحظه می‌شود که بین الیاف و پلیمر چسبندگی وجود دارد و در اثر شکست نمونه، الیاف از پلیمر کمتر خارج شده است.



شکل ۶- تصویر میکروسکوپ الکترونی از سطح شکست کامپوزیت با PVC اصلاح شده با سیلان.



استحکام کششی و مدول کششی می‌شود ولی استحکام ضربه‌ای نمونه‌های شکافدار و از دیاد طول تا پارگی را کاهش می‌دهد. با استفاده از جفت‌کننده سیلانی خواص مکانیکی آمیزه حاصل بهبود می‌یابد. نتایج نشان می‌دهد که بهترین استحکام کششی را آمیزه دارای ۳۰ درصد وزنی الیاف خمیر کاغذ پیوند خورده با ۱ درصد وزنی جفت‌کننده سیلانی دارد. همچنین، از میان دو روش پیوند خوردگی الیاف با سیلان و پیوند خوردگی پلیمر با جفت‌کننده سیلانی، آمیزه‌هایی که در آنها الیاف خمیر کاغذ با سیلان پوشش داده شده‌اند، به علت چسبندگی بهتر با فاز زمینه پلیمر، خواص مکانیکی بهتری را سبب می‌شوند.

شبکه‌ای شدن PVC می‌گردد (ساختار ۱) یا بر اساس مکانیسم پیشنهادی با گروه هیدروکسیل الیاف خمیر کاغذ اتصال برقرار می‌کند (ساختار ۲).

### نتیجه گیری

نتایج حاصل از این پژوهش نشان می‌دهد که از الیاف خمیر کاغذ CMP می‌توان به عنوان یک تقویت کننده آلی تخریب‌پذیر و ارزان قیمت در پلیمر PVC استفاده کرد. افزایش خمیر کاغذ به این پلیمر سبب افزایش

### مراجع

- Nabi Saheb D. and Jog J.P., Natural Fiber Polymer Composites: A Review, *Adv. Polym. Technol.*, **18**, 351-363, 1999.
- Lu Z.J., Qinglin W. and McNabb H.S., Chemical Coupling in Wood Fiber and Polymer Composite, *Wood Fiber Sci. J.*, **32**, 88-104, 2000.
- Takase S. and Shiraishi N., Studies on Composites From Wood and Polypropylene II, *J. Appl. Polym. Sci.*, **37**, 645-659, 1989.
- Maldas D. and Kokta B.V., Influence of Polar Monomers on the Performance of Wood Fiber Reinforced Polystyrene Composites. I. Evaluation of Critical Conditions, *Int. J. Polym. Mater.*, **14**, 165-189, 1990.
- Kokta B.V., Maldas D., Daneault C. and Bel P., Composites of Poly(vinyl chloride)- Wood Fibers. I. Effect of Isocyanate as Bounding Agent, *Polym. Plast. Technol. Eng.*, **29**, 87-118, 1990.

6. Stepek J. and Daoust S., *Additives for Plastics-Polymer Properties and Applications*, Springer Verlag, New York, 1983.
7. Matuanal M.R., Woodhaus T. and Parkc C.B., Influence of Interactions on the Properties of PVC / Cellulosic Fiber Composites, *Polym. Comp.* **19**, 446-454, 1998.
8. Hearn M.S., Baird J.D. and Gilber M., Silane Crosslinking of Plasticized Poly(vinyl chloride), *Polym. Commun.*, **31**, 194-197, 1990.
9. Plueddemann E.P., Silane-Coupling Agents in Reinforced Plastic, *J. Appl. Polym. Sci., Appl. Polym. Symp.*, **14**, 95-106, 1970.