

اثر عوامل جفت کننده مختلف بر خواص مکانیکی آمیزه های لاستیکی EPDM تقویت شده با پرکننده سیلیکا

Effect of Different Coupling Agents on Mechanical Properties of Silica Filled Reinforced EPDM Rubber Compunds

مجتبی ابطی^{*}، غلامرضا بخشنده

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

دریافت: ۸۲/۴/۴، پذیرش: ۸۲/۸/۲۰

چکیده

برای دستیابی به خواص مکانیکی مناسب در آمیزه های لاستیک EPDM ناگزیر باید از تقویت کننده ها استفاده کرد. این الاستومر به دلیل چگالی کم، دارای قابلیت زیادی در پذیرش پرکننده است، اما به دلیل سیرشدگی زیاد برای تقویت آن استفاده از عوامل جفت کننده برای ایجاد برهم کنش بین پرکننده و زنجیر الاستومر بسیار متداول است. در این پژوهش، از سه نوع عامل جفت کننده متداول در صنعت لاستیک استفاده شده و اثر آنها بر فرایند پخت و خواص محصولات پخت شده لاستیک EPDM پر شده با سیلیکای رسوبی مقایسه شده است. همه عوامل جفت کننده بکار رفته باعث استحکام شبکه و تقویت آن و در نتیجه بهبود خواص مکانیکی می شوند. عوامل جفت کننده با دو مکانیسم عمل می کنند: اثر بر فرایند پخت و ایجاد پیوندهای شیمیایی و همچنین ایجاد برهم کنش بین پرکننده و زنجیر پلیمر که با بررسی فرایند پخت و خواص مکانیکی آمیزه ها می توان تا حدودی سهم هر یک را معین کرد.

واژه های کلیدی

عامل جفت کننده، لاستیک، EPDM، آمیزه کاری، خواص مکانیکی

مقدمه

باعث بهبود خواص مکانیکی آمیزه و صرفه جویی اقتصادی می شوند [۱-۵].

در آمیزه های الاستومری هر چه مقدار پرکننده ها افزایش یابد، توزیع یا پراکنده شدن آنها در فاز الاستومری نیز مشکلتر می شود. این موضوع در مورد پرکننده هایی نظیر سیلیکاتهای

عوامل جفت کننده ترکیبات چندعاملی اند که یکی از موارد استفاده آنها افزایش کارایی پرکننده ها و ایجاد برهم کنش بین پرکننده و الاستومر است. این مواد تعداد پیوندهای عرضی را نیز افزایش داده و به عبارتی دیگر، مقدار ماده پخت مورد نیاز را کاهش می دهند و

Key Words

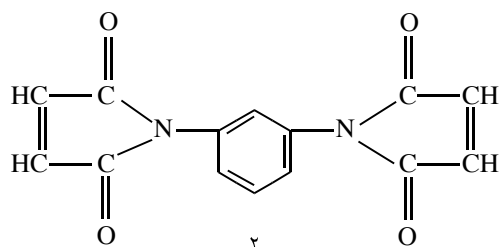
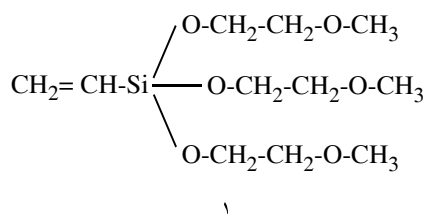
coupling agent, rubber, EPDM, compounding, mechanical properties

جدول ۱- عوامل جفت‌کننده بکار رفته در این پژوهش [۱۱،۱۴].

تولید کننده	نام تجاری	نام شیمیایی	علامت اختصاری
Dupont	HVA-۲	N',N'-متا فنیلن - بیس مالیمید	MPBM
Witco	سیلان ۱۷۲-A	وینیل تریس (۲-متوکسی اتوکسی) سیلان	—
Bayer	رنوفیت ۱۹۸۷	—	—

رادیکالهای آزاد وارد واکنش جذب یا جابه‌جایی هیدروژن از زنجیر پلیمری و ایجاد رادیکال پلیمر و در نتیجه ایجاد پیوند عرضی می‌شوند. این نتایج نشان می‌دهد که عوامل جفت‌کننده سرعت رادیکالهای پایدار ایجاد می‌کنند که از اتصال رادیکال پلیمر به رادیکال پروکسید و گسیختگی زنجیر پلیمر جلوگیری کرده و بدین ترتیب از عدم ایجاد پیوند عرضی و کاهش بازدهی فرایند پخت جلوگیری می‌کنند. به علاوه، ماهیت چند عاملی جفت‌کننده‌ها نیز باعث می‌شود که احتمال گرفتن هیدروژن از زنجیر پلیمر و ایجاد رادیکال روی آن و در نتیجه ایجاد پیوند عرضی افزایش یابد [۱۰-۱۲].

با توجه به نتایج مطالعات قبلی روی عامل جفت‌کننده TAC (tri-allyl cyanurate) [۱۳]، در این پژوهش، اثر سه نوع عامل جفت‌کننده دیگر متداول در صنعت لاستیک یعنی سیلان ۱۷۲-A، رنوفیت ۱۹۸۷ (Rhenofit) و HVA-۲ مورد بررسی قرار گرفت. مشخصات این عوامل جفت‌کننده در جدول ۱ [۱۱،۱۴] و دو نوع از آنها در ساختارهای ۱ و ۲ آمده است [۱۵،۱۶]. ساختار ۱ مربوط به عامل جفت‌کننده سیلانی ۱۷۲-A است و ساختار ۲ به HVA-۲ تعلق دارد. در زمینه اثر عوامل جفت‌کننده سیلانی تحقیقات زیادی انجام شده است [۱-۱۴] نتایج نشان می‌دهد که عوامل جفت‌کننده سیلانی باعث



رسوبی نیز، که از بهترین تقویت‌کننده‌های سفید بشمار می‌روند، صدق می‌کند. با افزایش سطح (فعال) ویژه خارجی پرکننده‌ها اختلاط و پراکندگی آنها نیز در پلیمر مشکلت‌تر می‌شود، بویژه هنگامی که در مقادیر زیاد در فرمولبندی مصرف می‌شوند. از طرفی گرانی‌های آمیزه‌ها با افزایش پرکننده یا افزایش قدرت تقویت‌کنندگی پرکننده‌ها بیشتر می‌شود. در چنین حالتی، اگر پرکننده و پلیمر بتوانند جاذبه کمی ایجاد کنند، گرانی‌های آمیزه‌ها کاهش می‌یابد.

از این رو، در صورت استفاده از عوامل جفت‌کننده، که باعث می‌شوند مواد جذب شده به سطح پرکننده‌ها قوی‌تر از الاستومری باشد که به آمیزه اضافه می‌شود، گرانی‌های آمیزه کاهش می‌یابد و در نتیجه فرایندپذیری آن بهتر می‌شود. بنابراین، گاهی این گروه را مواد فعال‌کننده نیز می‌نامند [۶].

لاستیک EPDM (ethylene-propylene-diene monomer) یکی از پر مصرف‌ترین الاستومر در صنایع مختلف است که به دلیل داشتن پیوندهای دوگانه کم در ساختار خود از مقاومت در برابر اوزون و نیز مقاومت شیمیایی خوبی برخوردار است. این الاستومر به تنهایی خواص مکانیکی مناسبی ندارد و بهبود خواص آن با استفاده از مواد مختلف از جمله پرکننده‌ها همواره توجه محققان را به خود جلب کرده است [۷،۸]. چگالی EPDM از سایر الاستومرها کمتر بوده و قابلیت پذیرش پرکننده زیادی دارد، بنابراین در آمیزه‌های EPDM از مقادیر زیادی پرکننده استفاده می‌شود و به دلیل سیرشدگی زیاد این الاستومر استفاده از عوامل جفت‌کننده برای ایجاد برهم‌کنش بین پرکننده و زنجیر الاستومری بسیار متداول است و تحقیقات گسترده‌ای روی اثر عوامل جفت‌کننده بر خواص آمیزه‌های لاستیک EPDM انجام گرفته است [۵-۹].

از آنجا که تعداد پیوندهای دوگانه در EPDM بسیار کم است و بر اساس مطالعات انجام شده عوامل جفت‌کننده اغلب از راه پیوند دوگانه وارد عمل می‌شوند، عمدتاً از سیستم پخت پروکسیدی برای ایجاد پیوندهای عرضی در EPDM در مجاورت عوامل جفت‌کننده استفاده می‌شود، مگر در مواردی که عامل جفت‌کننده گوگرددار باشد.

در انتخاب عامل جفت‌کننده در آمیزه‌هایی با سیستم پخت پروکسیدی باید به مواردی نظیر انحلال‌پذیری، نحوه واکنش آن با رادیکال پروکسید و همچنین کارایی نهایی آن توجه کافی داشت. مطالعه مکانیسم ایجاد پیوند عرضی (پخت) بوسیله رادیکال آزاد نشان می‌دهد که انتخاب درست عامل جفت‌کننده و پروکسید مناسب، اثر چشمگیری در دستیابی به پخت بهینه دارد. پژوهشگران، ایجاد پیوند عرضی به کمک پروکسید در پلیمرهای اتیلن-پروپیلن را از جنبه‌های یاد شده مورد بررسی قرار داده‌اند. نتایج مطالعات آنها نشان می‌دهد که ابتدا پروکسید بر اثر گرما تخریب می‌شود و رادیکال آزاد بوجود می‌آید.

تجربی

مواد

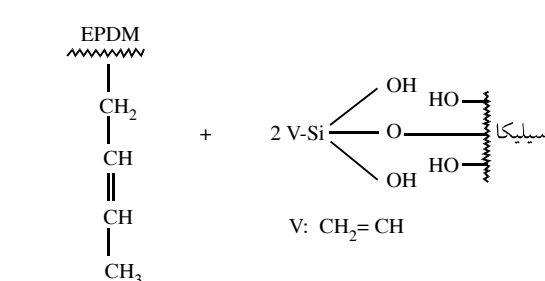
در این پژوهش از لاستیک EDPM با نام تجاری Vistalon ۷۵۰۰ ساخت شرکت اکسون با جزء اتیلن زیاد و گرانیوی مونی ۷۷-۷۸ در دمای ۹۸°C، دی کومیل پروکسید به شکل ۴۰ درصد فعال ساخت کشور تایوان، پرکننده سیلیکای رسوبی با نام تجاری ولکاسیل (Vulkasil) S ساخت شرکت بایر آلمان، روغن پارافین ۸۴۰ از شرکت نفت بهران و عوامل جفت کننده شامل سیلان A-۱۷۲، HVA-۲ و رنوفیت ۱۹۸۷ که مشخصات آنها در جدول ۱ آمده است، استفاده شد.

روشها

در جدول ۲ کلیه فرمولبندیهای تهیه شده آمده است. در آمیزه‌های A، B، C، D، E و F اثر وجود پرکننده و روغن به نسبت‌های مختلف بررسی شده است و در فرمولبندیهای G، H، I، J و K اثر وجود پرکننده به نسبت‌های مشخص با فرمولبندیهای پایه به ترتیب B، C، D، E و F مقایسه شده اند.

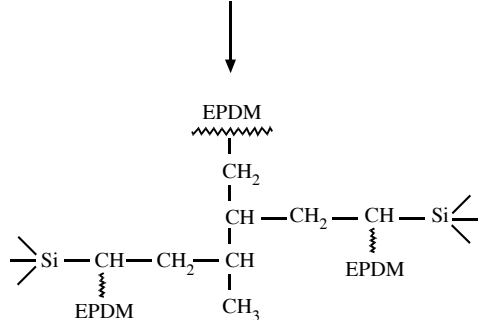
پراکنندگی بهتر پرکننده، آگریزی و استحکام در آمیزه‌های پر شده EPDM می‌شوند. به عنوان مثال وینیل سیلان به لحاظ ساختار دو عاملی خود امتیازات یاد شده را داراست. گروه آلی آن قابلیت ایجاد پیوند کووالانسی را با فاز پلیمری دارد و از طرف دیگر گروه آلوکوسی آن با گروه هیدروکسیل در سطح پرکننده پیوند برقرار می‌کند [۱۶]. به هر حال مطابق آنچه که برای نحوه عملکرد سیلان پیشنهاد می‌شود (طرح ۱) گروه‌های موجود در سطح سیلان این قابلیت را دارند که با یک، دو و حتی سه عامل هیدروکسیل سطح پرکننده واکنش داده و سپس پرکننده عامل دار شده با گروه جانبی EPDM واکنش دهد [۱۷-۱۹].

درباره نحوه عملکرد HVA-۲ پژوهش‌های کمتری انجام شده است [۲۰]. نتایج این پژوهش‌ها نشان می‌دهد که وجود این عامل جفت کننده باعث بهبود خواص مکانیکی می‌شود، اما سهم آن در افزایش چگالی پیوندهای عرضی بیشتر از اتصال پرکننده به لاستیک است. در مورد رنوفیت اطلاعات چندانی در دسترس نیست و حتی شرکت سازنده این ماده ساختار شیمیایی آن را ارائه نکرده است. یکی از اهداف این پژوهش ارائه طرحی از نحوه عملکرد این عامل جفت کننده است.

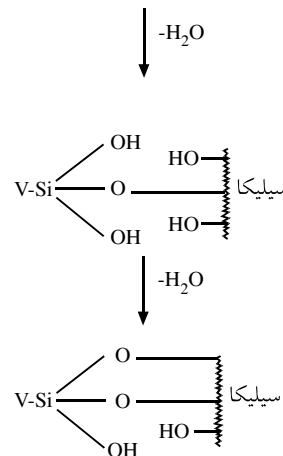
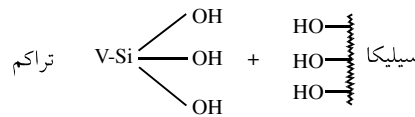
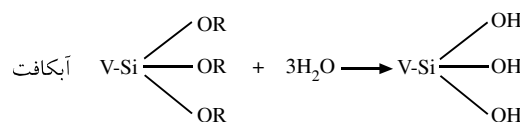


گروه آویزان الاستومر EPDM

در دمای وولکانش



(ب)



(الف)

طرح ۱ - مکانیسم پیشنهادی برای نحوه عملکرد وینیل سیلان [۱۷، ۱۹]: (الف) برهم کنش عامل جفت کننده وینیل سیلان با پرکننده سیلیکا و (ب) برهم کنش سیلیکای اصلاح شده با عامل جفت کننده وینیل سیلان با الاستومر EPDM.

جدول ۲- فرمولبندی آمیزه های تهیه شده.

ماده	نمونه										
	K	J	I	H	G	F	E	D	C	B	A
الاستومر EPDM	۱۰۰	۱۰۰	۱۰۰	۱۰۰	۱۰۰	۱۰۰	۱۰۰	۱۰۰	۱۰۰	۱۰۰	۱۰۰
روی اکسید	۵	۵	۵	۵	۵	۵	۵	۵	۵	۵	۵
DCP	۵	۵	۵	۵	۵	۵	۵	۵	۵	۵	۵
سیلیکا	۴۰	۳۰	۲۰	۱۰	۵	۴۰	۳۰	۲۰	۱۰	۵	۰
روغن	۳۰	۲۴	۱۸	۱۲	۶	۳۰	۲۴	۱۸	۱۲	۶	۰
عوامل جفت کننده	۳	۲/۴	۱/۸	۱/۲	۰/۶	۰	۰	۰	۰	۰	۰



شکل ۲- اثر فرمولبندی، نوع و مقدار عوامل جفت کننده بر زمان پخت آمیزه ها: (□) کنترل، (■) سیلان، (▲) HVA-۲ و (⊠) رنوفیت.

نتایج و بحث

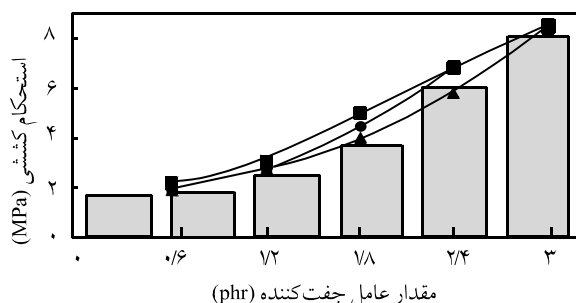
اثر عوامل جفت کننده بر فرایند پخت

در شکل ۱ مشاهده می شود که زمان برشتهگی در مجاورت عوامل جفت کننده تغییرات متفاوتی دارد که این تغییرات بیشتر در اثر مکانیسم و ساختار عوامل جفت کننده و بارگذاری یعنی همان نسبت پرکننده به عامل جفت کننده بوجود آمده است. اما، نتیجه نهایی در هر نوع عامل جفت کننده به غالب بودن هر یک از عوامل یاد شده بستگی دارد. یعنی اگر در آمیزه های دارای عامل جفت کننده رنوفیت نسبت به نمونه کنترل افزایش در زمان برشتهگی دیده می شود، این ازدیاد بیشتر در اثر نوع ساختار بوده است. صحت این موضوع زمانی آشکار می گردد که به کاهش زمان برشتهگی آمیزه دارای HVA-۲ که بیشتر بدلیل مکانیسم و ساختار آن است توجه شود (شکل ۱). هر HVA-۲ قابلیت تشکیل چهار پیوند با سیلیکا را دارد، از این رو اثرگذاری آن یعنی شرکت در پخت آن نسبت به سایر عوامل جفت کننده بسیار محسوستر خواهد بود. اما، تغییرات ناشی از عملکرد سیلان در بارگذاریهای متفاوت را با توجه به شناخته تر بودن مکانیسم و ساختار سیلان نسبت به دو عامل جفت کننده یاد شده، می توان به بارگذاری نسبت داد. به عبارتی، در عملکرد سیلان هر جا ترشوندگی بیشتر بوده است پخت کمتر به تأخیر افتاده است. سیلیکا با توجه به ماهیت اسیدی خود در سیستم پخت گوگردی

که فرمولبندی A نقش کنترل را داراست.

فرمولبندی G تا K برای هر سه عامل جفت کننده سیلان، HVA-۲ و رنوفیت تهیه شده و در اعلام نتایج عدد ۱ برای سیلان، عدد ۲ برای HVA-۲ و عدد ۳ برای رنوفیت در نظر گرفته شده است.

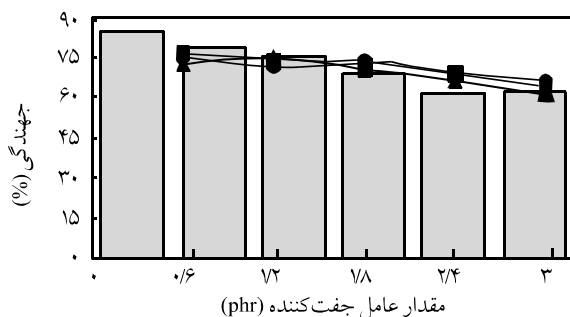
یادآور می شود که آمیزه های پایه در بنیوری تهیه شده اند. برای این منظور، ابتدا EPDM وارد بنیوری می شود و بمدت ۳ min تحت تنش قرار می گیرد تا به دمای ۵۰°C برسد. در مرحله بعد، نصف مقدار مجموع پرکننده و روغن به مخلوط اضافه می شود و مدت ۳ min طول می کشد تا دما در ۷۰°C ثابت بماند. در مرحله بعد، بقیه مجموع پرکننده و روغن نیز اضافه می شود و پس از ۳ min دما به ۷۸°C می رسد. بعد از زمان ۱ min دمای کل مجموعه به ۹۰°C افزایش می یابد که سپس مجموعه تخلیه می شود. بعد از سرد شدن آمیزه DCP و عوامل جفت کننده روی غلتک در دمای ۵۰°C بمدت ۲ min به آمیزه ها اضافه شدند. کلیه آمیزه ها در دمای ۱۷۰°C و به شکل ورقه ای به ضخامت ۲ mm پخت شده اند. پس از تهیه نمونه استحکام کششی و درصد ازدیاد طول تا پارگی در دمای محیط بر اساس استاندارد ASTM D ۴۱۲، سختی نمونه ها بر طبق استاندارد ASTM D ۲۲۴۰، زمان پخت و برشتهگی مطابق استاندارد ASTM D ۲۰۸۴-۸۸، جهندگی نمونه ها طبق استاندارد ASTM D ۱۰۵۴ و مقاومت سایشی مطابق ASTM D ۲۲۲۸-۶۹ اندازه گیری شده اند.



شکل ۳- اثر فرمولبندی، نوع و مقدار عوامل جفت کننده بر استحکام کششی آمیزه ها: (□) کنترل، (●) سیلان، (■) HVA-۲ و (▲) رنوفیت.



شکل ۱- اثر فرمولبندی، نوع و مقدار عوامل جفت کننده بر زمان برشتهگی آمیزه ها: (□) کنترل، (■) سیلان، (▲) HVA-۲ و (⊠) رنوفیت.

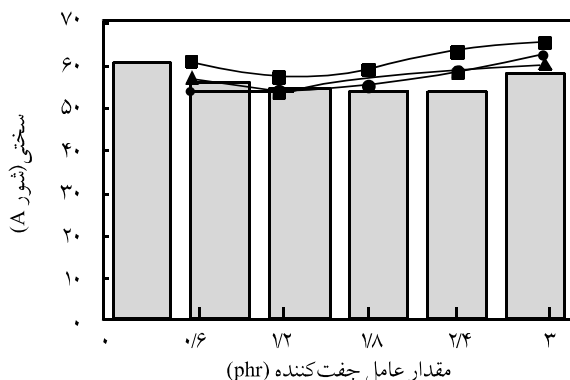


شکل ۶ - اثر فرمولبندی، نوع و مقدار عوامل جفت کننده بر جهندگی آمیزه ها: (□) کنترل، (●) سیلان، (■) HVA-2 و (▲) رنوفیت.

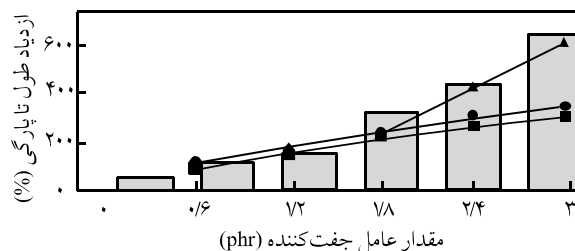
سایشی می شود. با افزایش مقدار B نسبت به نمونه کنترل (شکل ۵) می توان این موضوع را به کمتر شدن سختی به دلیل ورود روغن نسبت داد که این خاصیت تقویت کنندگی در کلیه آمیزه های دارای عوامل جفت کننده دیده می شود. عوامل جفت کننده با وارد شدن در سیستم پخت و تشکیل کمپلکسهای واسطه و در نتیجه بهبود حالت پخت، باعث بهبود خواص مکانیکی آمیزه می شوند. سیلیکا به عنوان پرکننده ای فعال (تقویت کننده) خواص مکانیکی را بهبود می بخشد (شکل های ۳ تا ۵) اما باعث تضعیف بعضی از خواص نظیر جهندگی می شود (شکل ۶). وجود عوامل جفت کننده باعث تشکیل شبکه انسجام یافته تری می شود و خواص کشسانی و در نتیجه جهندگی را بهبود می دهد (شکل ۶) همچنین باعث افزایش مقاومت سایشی آمیزه می گردند (شکل ۷).

نتیجه گیری

نتایج آزمایشهای انجام شده نشان می دهد که کلیه عوامل جفت کننده



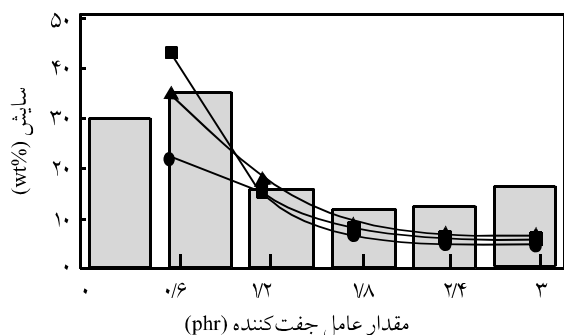
شکل ۷ - اثر فرمولبندی، نوع و مقدار عوامل جفت کننده بر سختی آمیزه ها: (□) کنترل، (●) سیلان، (■) HVA-2 و (▲) رنوفیت.



شکل ۴ - اثر فرمولبندی، نوع و مقدار عوامل جفت کننده بر ازدیاد طول تا پارگی آمیزه ها: (□) کنترل، (●) سیلان، (■) HVA-2 و (▲) رنوفیت.

غالباً موجب افزایش زمان برشتگی می شود. اما، در الاستومرهای با درصد سیرشدگی بیشتر مانند EPDM که با پروکسید پخت می شود، سیلیکا ضمن حفظ روند صعودی در زمان برشتگی (شکل ۱) سرعت پخت را نیز افزایش می دهد (شکل ۲) و بدین ترتیب موجب کاهش زمان پخت بهینه می شود. عوامل جفت کننده در زمان پخت بهینه از همان روند زمان برشتگی تبعیت می کنند (شکل ۲).

از نتایج خواص مکانیکی بویژه استحکام کششی و ازدیاد طول تا پارگی می توان این گونه استنباط کرد که با توجه به بالا رفتن چگالی پیوند عرضی (CLD) [۲۱] در کلیه آمیزه های دارای عوامل جفت کننده استحکام کششی نسبت به نمونه کنترل افزایش می یابد (شکل های ۳ و ۴) و ازدیاد طول تا پارگی کاهش پیدا می کند. علت افزایش کمتر استحکام کششی در رنوفیت نسبت به HVA-2 و سیلان مکانیسم واکنش است، زیرا همین رفتار حالتی معکوس در ازدیاد طول تا پارگی دارد، یعنی رنوفیت در ازدیاد طول تا پارگی افت کمتری نسبت به دو عامل دیگر نشان می دهد. توجه به این رفتار در شکل های ۱ و ۲ مشاهده می شود. در نمونه های دارای سیلان و HVA-2 اثر CLD بیشتر است، یعنی نمونه دارای رنوفیت، بیشتر برهم کنش فیزیکی و واندروالسی دارد. پرکننده سیلیکا باعث کاهش مقدار سایش و افزایش مقاومت



شکل ۵ - اثر فرمولبندی، نوع و مقدار عوامل جفت کننده بر مقاومت سایشی آمیزه ها: (□) کنترل، (●) سیلان، (■) HVA-2 و (▲) رنوفیت.

می‌دهد. این مطلب در مورد تفاوت مکانیسم دو عامل جفت‌کننده سیلان و HVA-2 با رنوفیت صادق است. نحوه اثرگذاری این عامل جفت‌کننده اخیر بیشتر به شکل فیزیکی بوده و از این رو در ازدیاد طول تا پارگی نه تنها افت دیده نمی‌شود بلکه افزایشی نیز در آن مشاهده می‌گردد.

با توجه به نتایج بدست آمده می‌توان فرمولبندی بهینه موردنظر را طراحی کرد. برای صحت این مطلب کافی است به نسبت‌های پرکننده به روغن و عوامل جفت‌کننده به پروکسید توجه کرد. در ضمن، با توجه به این نسبتها می‌توان پیش‌بینی خوبی از خواص نسبت به مقیاس یابی در مقادیر بارگذاری بیشتر پرکننده در لاستیک EPDM داشت.

قدردانی

بدین وسیله از زحمات خانم مهندس سلوی فرهنگزاده و خانم مهندس هاجر جمشیدی در تصحیح متن مقاله قدردانی می‌شود.

مراجع

- Cataldo F., Preparation of Silica-Based Rubber Compounds without the Use of a Silane Coupling Agent through the Use of Epoxidized Natural Rubber, *Macromol. Mater. Eng.*, **287**, 348-352, 2002.
- Manna Ak., Bhattacharyya Ak., De Pp., Tripathy Dk., De K. and Puffer D.G., Effect of Surface Oxidation of Filler and Silane Coupling Agent on the Chemorheological Behavior of Epoxidized Natural Rubber Filled with Isaf Carbon Black, *J. Appl. Polym. Sci.*, **71**, 557-563, 1999.
- Manna Ak., Tripathy Dk., De Pp., Die Sk., Chatterjee, Mk. and Peiffer Dg., Bonding between Epoxidized Natural Rubber and Clay in Presence of Silane Coupling Agent, *J. Appl. Polym. Sci.*, **72**, 1895-1903, 1999.
- Ismail H. and Edyham S., The Effect of a Silane Coupling Agent on Curing Characteristics and Mechanical Properties of Bamboo Filled Natural Rubber Composites, *Eur. Polym. J.*, **38**, 39-47, 2002.
- Robert C.K., Peroxide Curing of Ethylene-Propylene Elastomers, *Rubber Chem. Technol.*, **61**, 239-254, 1987.
- Wagnor M.P., Heat Generation and Rubber-Filler Coupling Bonds, *Rubber Chem. Technol.*, **47**, 697-716, 1974.
- Dutte N., Influence of Ethylene/Propylene Ratio on the Thermal Degradation Behavior of EPDM Elastomers, *Thermochemica Acta*, **367-368**, 185-193, 2001.
- Cheremisinoff N.P., Spotlight on EPDM Elastomers, *Polym. Plast. Technol. Eng.*, **31**, 713-744, 1992.
- Ranney M.W. and Pagnao C.A., Silane Coupling Agent Effects in Ethylene Propylene Terpolymers, *Rubber Chem. Technol.*, **44**, 1080-1092, 1971.
- Pal P.K. and De S.K., Studies on Peroxide Vulcanization of Silica-Filled EPDM Rubber in Presence of Vinyl Silane, *Polymer*, **25**, 855-862, 1984.
- Kelnak A. and Schatz M., Silane Crosslinking of PVC II, Influence of Silan Type and Conditions on Crosslinking by Water, *J. Appl. Polym. Sci.*, **48**, 649-669, 1993.
- Monte S.J. and Sugerman G., The Effect of Titanate Coupling Agent, The 116th ACS Conference, Rubber Division, Ohio, USA, Oct. 23-26, 1979.
- Bakhshandeh G.R. and Abtahi M., Study on Peroxide Vulcanization and Mechanical Properties of Silica Filled EPDM Rubber in Presence of TAC Coupling Agent, *Iran. J. Polym. Sci. Technol. (in Persian)*, **15**, 367-372, 2003.

14. Blodgett R.B., Ethylene-Propylene Rubber and Crosslinked Polyethylene as Insulation for 900C Rated Medium Voltage Cables, *Rubber Chem. Technol.*, **52**, 410-424, 1979.
15. Huber J.M. Company, Hydrated Aluminum Silicate, Technical Bulletin, October 1968.
16. Jesionowski T. and Krysztalkiewicz A., Influence of Silane Coupling Agents on Surface Properties of Precipitated Silicas, *Appl. Surface Sci.*, **172**, 18-23, 2001.
17. Fusco J.V., The Effect of Vinyl Group on Silane Reaction, *Rubber World*, **48**, 147-152, 1966.
18. ESSO Research and Engineering Co., Use of Trichlorosilane, *US Pat. 3, 366, 612*, January 1968.
19. Midland Silanes Ltd., Use of Silanes, *US Pat.3,646,155*, February 1972.
20. Okita T. Nagasaki N., Okamura H. and Ohashi K., The Vulcanizing Mechanism of N, N' M-Phenylene-Bis-Maleimide Properties, *Preceding of IRC 95*, Kyoto, Japan, 875-880, Oct.15-18, 1985.
21. Murgic Z.H., Jelencic J. and Murgic L., The Mechanism of Triallylcyanurate as a Coagent in EPDM Peroxide Vulcanization, *Polym. Eng. Sci.*, **38**, 689-692,1998.