

Effect of extrusion and 3D printing methods on morphological characteristics of biocomposite for chair printing

Behrouz Neyciyani¹, Mehdi Jonoobi^{2*}, Payam Moradpour^{3*},
Mohammad Razavi-Nouri⁴

1- PhD Student, Department of Wood and Paper Science and Technology, Faculty of Natural Resources, Faculties of Agriculture and Natural Resources, University of Tehran, Iran

2- Corresponding Author, Professor, Department of Wood and Paper Science and Technology, Faculty of Natural Resources, Faculties of Agriculture and Natural Resources, University of Tehran, Iran. E-mail: mehdi.jonoobi@ut.ac.ir

3- Corresponding Author, Associate Professor, Department of Wood and Paper Science and Technology, Faculty of Natural Resources, Faculties of Agriculture and Natural Resources, University of Tehran, Iran. E-mail: pmoradpour@ut.ac.ir

4- Associate Professor, Department of Plastics, Faculty of Polymer Processing, Iran Polymer and Petrochemical Institute, Tehran, Iran

Received: October 2025

Accepted: January 2026

Abstract

Problem definition and objectives: Growing concerns about plastic pollution have increased the interest in biopolymers such as polylactic acid (PLA) due to their biodegradability and processability. However, the brittleness of PLA poses limitations in structural applications. Natural reinforcements such as wood flour (WF) and microcrystalline cellulose (MCC) can improve the mechanical properties of PLA, but their uniform dispersion and phase coherence depend on the extrusion method and the type of 3D printing. This study investigates the effect of extrusion repetition and comparison of two 3D printing methods, fused filament (FFF) and fused granulation (FGF), on the morphological and structural properties of PLA-WF-MCC biocomposites to determine the most optimal production conditions for structural applications such as chair printing.

Methodology: In this study, PLA granules were used as the main matrix, MCC as the reinforcing phase, and WF as the filler to produce biocomposites. The PLA-WF-MCC blend was passed through a single-stage and two-stage twin-screw extruder to make the composite. After the extrusion process, the biocomposites were divided into four different methods to investigate the effects of the extrusion process repetition and 3D printing methods on their morphological characteristics. 3D printing methods including fused filament (FFF) and fused granule (FGF) were used to make 3D samples. All the setting parameters in the two 3D printing methods included a temperature of 210°C for filament and granule, 60°C for the printing bed, a printing speed of 40 mm/s, a layer thickness of 0.2 mm, and a filler density of 100%. In order to investigate the interphase adhesion, particle dispersion, microstructure, porosity and structural quality, scanning electron microscope (SEM) images of extruded and printed samples were prepared and analyzed. These images were recorded at different magnifications and scales and used to analyze and compare morphological features and structural density.

Results: The results of SEM images showed that in the single-extruded samples, uniform and homogeneous dispersion of MCC was observed in the PLA matrix and the adhesion between the

phases was well established. Also, in these samples, no clear boundary was observed between the polymer matrix and MCC, indicating good and homogeneous mixing of the materials. In contrast, the double-extruded samples suffered from interphase separation and the formation of micropores in the phase boundary areas. These differences were due to the high thermal sensitivity of PLA and its partial degradation in the two-step extrusion process, which reduced the structural quality and created porosity in the samples. These results indicate that in biocomposites, the number of extrusion steps plays an important role in maintaining the balance between proper mixing and structural integrity. In the 3D printing process, the once-extruded samples were selected for printing due to their uniform dispersion and better morphological properties. Among the two printing methods, the samples fabricated by the granular method had better morphological properties and showed less porosity than the filament samples. In this method, due to the reduction of thermal stresses and improved bonding of the layers, a denser structure was obtained, which is more suitable for printing a chair. Finally, the chair was successfully printed by the granular method.

Conclusion: Based on the results of this study, the single-extruded samples had a uniform dispersion of MCC in the PLA matrix, which improved interfacial adhesion and structural integrity. In PLA-WF-MCC biocomposites, the double-extrusion process caused interfacial separation and voids, which is related to the high thermal sensitivity of PLA. These results indicate that choosing the optimal extrusion level is essential to maintain a balance between mixing and structural stability. Also, in the 3D printing process, single-extruded samples with desirable microstructural characteristics were selected for the filament and granular methods. In the granular method, fewer voids were observed compared to the filament method and a denser structure was provided for 3D printing, which improved the structural quality of the parts. The granular method was selected as a more suitable method for chair printing due to the advantages of reducing thermal stresses, improving uniform material distribution, and reducing voids.

Keywords: Polylactic acid, microcrystalline cellulose, extrusion process, filament and granular 3D printing, chair printing.

اثر اکستروژن و روش‌های چاپ سه‌بعدی بر ویژگی‌های مورفولوژی کامپوزیت زیستی برای چاپ

صندلی

بهروز نیسیانی^۱، مهدی جنوبی^{۲*}، پیام مرادپور^{۳*}، محمد رضوی نوری^۴

- ۱- دانشجوی دکتری، گروه علوم و صنایع چوب و کاغذ، دانشکده منابع طبیعی، دانشکده‌گان کشاورزی و منابع طبیعی، دانشگاه تهران، ایران.
 ۲- نویسنده مسئول، استاد، گروه علوم و صنایع چوب و کاغذ، دانشکده منابع طبیعی، دانشکده‌گان کشاورزی و منابع طبیعی، دانشگاه تهران، ایران. رایانامه: mehdi.jonoobi@ut.ac.ir
 ۳- نویسنده مسئول، دانشیار، گروه علوم و صنایع چوب و کاغذ، دانشکده منابع طبیعی، دانشکده‌گان کشاورزی و منابع طبیعی، دانشگاه تهران، ایران. رایانامه: pmoradpour@ut.ac.ir
 ۴- دانشیار، گروه پلاستیک، پژوهشکده فرآیند، پژوهشگاه پلیمر و پتروشیمی ایران، تهران، ایران.

تاریخ پذیرش: دی ۱۴۰۴

تاریخ دریافت: آبان ۱۴۰۴

چکیده

بیان مساله و اهداف: نگرانی‌های رو به افزایش درباره آلودگی‌های پلاستیکی، توجه به پلیمرهای زیستی مانند پلی لاکتیک اسید (PLA) را به دلیل زیست‌تخریب‌پذیری و قابلیت فرآیندپذیری افزایش داده است. با این حال، شکنندگی PLA محدودیت‌هایی در کاربردهای سازه‌ای ایجاد می‌کند. تقویت‌کننده‌های طبیعی مانند آرد چوب (WF) و میکرو بلور سلولز (MCC) می‌توانند خواص مکانیکی PLA را بهبود دهند، اما پراکنش یکنواخت آن‌ها و انسجام فازها به روش اکستروژن و نوع چاپ سه‌بعدی وابسته است. این مطالعه اثر تکرار فرآیند اکستروژن و مقایسه دو روش چاپ سه‌بعدی فیلامنت ذوب شده (FFF) و گرانول ذوب شده (FGF) بر ویژگی‌های مورفولوژی و ساختاری کامپوزیت‌های زیستی PLA-WF-MCC را بررسی می‌کند تا بهینه‌ترین شرایط تولید برای کاربردهای سازه‌ای مانند چاپ صندلی تعیین شود.

مواد و روشها: در این تحقیق، برای تولید کامپوزیت‌های زیستی از گرانول‌های PLA به‌عنوان ماتریس اصلی، MCC به‌عنوان فاز تقویت‌کننده و WF به‌عنوان پرکننده استفاده شد. ترکیب PLA-WF-MCC جهت ساخت کامپوزیت از اکستروژن دو مرحله‌ای و دو مرحله‌ای عبور داده شدند. کامپوزیت‌های زیستی پس از فرآیند اکستروژن به چهار روش مختلف تقسیم شدند تا اثرات تکرار فرآیند اکستروژن و روش‌های چاپ سه‌بعدی بر ویژگی‌های مورفولوژی آن‌ها بررسی شود. روش‌های چاپ سه‌بعدی شامل فیلامنت ذوب شده (FFF) و گرانول ذوب شده (FGF) برای ساخت نمونه‌های سه‌بعدی مورد استفاده قرار گرفتند. کلیه پارامترهای تنظیمی در دو روش چاپ سه‌بعدی شامل دمای ۲۱۰ درجه سانتی‌گراد برای فیلامنت و گرانول، ۶۰ درجه سانتی‌گراد برای بستر چاپ، سرعت چاپ ۴۰ میلی‌متر بر ثانیه، ضخامت لایه ۰/۲ میلی‌متر و تراکم پرکننده ۱۰۰ درصد بود. به‌منظور بررسی چسبندگی بین‌فازها، پراکندگی ذرات، ریزساختار، میزان تخلخل و کیفیت ساختاری، تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) از نمونه‌های اکستروژن شده و چاپ شده تهیه و مورد تحلیل قرار گرفت. این تصاویر در بزرگ‌نمایی‌ها و مقیاس‌های مختلف ثبت شده و برای تحلیل و مقایسه‌ی ویژگی‌های مورفولوژیکی و تراکم ساختاری مورد استفاده قرار گرفتند.

نتایج: نتایج بررسی تصاویر SEM نشان داد که در نمونه‌های یک‌بار اکستروژن شده، پراکندگی یکنواخت و همگن MCC در ماتریس PLA مشاهده شد و چسبندگی بین فازها به‌خوبی برقرار بود. همچنین، در این نمونه‌ها هیچ مرز مشخصی بین ماتریس پلیمری و MCC مشاهده نشد که نشان‌دهنده اختلاط خوب و همگن مواد است. در مقابل، نمونه‌های دو بار اکستروژن شده دچار جدایش بین فازی و ایجاد حفرات ریز در نواحی مرزی فازها شدند. این تفاوت‌ها به دلیل حساسیت حرارتی بالای PLA و تخریب جزئی آن در فرآیند اکستروژن دو مرحله‌ای بود که موجب کاهش کیفیت ساختاری و ایجاد تخلخل در نمونه‌ها گردید. این نتایج نشان می‌دهند که در کامپوزیت‌های زیستی، تعداد مراحل فرآیند

اکستروژن نقش مهمی در حفظ تعادل بین اختلاط مناسب و سلامت ساختاری ایفا می‌کند. در فرآیند چاپ سه‌بعدی، نمونه‌های یک‌بار اکستروژن شده به دلیل پراکندگی یکنواخت و ویژگی‌های مورفولوژی بهتر، برای چاپ انتخاب شدند. در میان دو روش چاپ، نمونه‌های ساخته‌شده به روش گرانولی از ویژگی‌های مورفولوژی بهتری برخوردار بودند و تخلخل کمتری نسبت به نمونه‌های فیلامنتی نشان دادند. در این روش، به دلیل کاهش تنش‌های حرارتی و بهبود پیوند لایه‌ها، ساختار متراکم‌تری حاصل شد که مناسب‌تر برای چاپ صندلی است. در نهایت، صندلی با موفقیت به‌وسیله‌ی روش گرانولی چاپ شد.

نتیجه‌گیری: بر اساس نتایج این تحقیق، نمونه‌های یک‌بار اکستروژن شده دارای پراکندگی یکنواخت MCC در ماتریس PLA بودند که باعث بهبود چسبندگی بین فازی و انسجام ساختاری شد. در کامپوزیت‌های زیستی PLA-WF-MCC، فرآیند اکستروژن دو بار باعث جدایش بین فازی و حفرات شد که به حساسیت حرارتی بالای PLA مربوط است. این نتایج نشان می‌دهند انتخاب سطح بهینه اکستروژن برای حفظ تعادل بین اختلاط و پایداری ساختاری ضروری است. همچنین، در فرآیند چاپ سه‌بعدی، نمونه‌های یک‌بار اکستروژن شده با ویژگی‌های ریزساختار مطلوب برای روش‌های فیلامنتی و گرانولی انتخاب شدند. در روش گرانولی، حفرات کمتری در مقایسه با روش فیلامنتی مشاهده شد و ساختار متراکم‌تری برای چاپ سه‌بعدی فراهم شد که موجب بهبود کیفیت ساختاری قطعات شد. روش گرانولی به دلیل مزایای کاهش تنش‌های حرارتی، بهبود توزیع یکنواخت مواد و کاهش حفرات، به‌عنوان روش مناسب‌تری برای چاپ صندلی انتخاب گردید.

واژه‌های کلیدی: پلی لاکتیک اسید، میکرو بلور سلولز، فرآیند اکستروژن، چاپ سه‌بعدی فیلامنتی و گرانولی،

چاپ صندلی.

مقدمه

پایدار رشد چشمگیری داشته است [۴ و ۵]. با وجود مزایای زیست‌محیطی و چاپ پذیری مطلوب، PLA ذاتاً پلیمری نسبتاً شکننده با مقاومت ضربه‌ای و چقرمگی محدود است [۶] و برای کاربردهای سازه‌ای و باربر، به‌ویژه در چاپ سه‌بعدی صندلی، لازم است خواص مکانیکی آن ارتقا یابد [۵]. از این‌رو، در سال‌های اخیر، استفاده از تقویت‌کننده‌های طبیعی به‌عنوان راهکاری مؤثر برای رفع محدودیت‌های مکانیکی PLA و در عین حال کاهش هزینه‌های تولید موردتوجه قرار گرفته [۶ و ۷]. در این راستا، استفاده از پرکننده‌های طبیعی مانند آرد چوب^۲ (WF) به دلیل سازگاری زیستی، فراوانی و هزینه‌ی پایین، راهکاری مؤثر برای بهبود خواص پلیمرهای زیستی به شمار می‌رود. افزودن آن به PLA ضمن کاهش هزینه، موجب افزایش مدول و پایداری حرارتی و مکانیکی کامپوزیت می‌شود [۸]. اخیراً، ترکیب PLA و آرد چوب در فرآیند چاپ سه‌بعدی مبلمان زیستی، به‌ویژه در تولید صندلی‌های سبک و مقاوم موردتوجه ویژه قرار گرفته است [۵]. این کامپوزیت‌های زیستی با ایجاد پیوند مؤثر بین فاز چوب و ماتریس پلیمری، امکان تولید قطعاتی با استحکام

در دهه‌های اخیر، افزایش نگرانی‌ها نسبت به آلودگی‌های ناشی از زباله‌های پلاستیکی و آثار کربنی آن، موجب شده است که توسعه‌ی پلیمرهای زیستی و مواد تجدید پذیر به یکی از محورهای اصلی پژوهش‌های مهندسی مواد و محیط‌زیست تبدیل شود [۱]. در این میان، پلی‌لاکتیک‌اسید (PLA) به‌عنوان یکی از مهم‌ترین پلیمرهای زیستی، به دلیل منشأ طبیعی، زیست‌تخریب‌پذیری، زیست‌سازگاری و فرآیندپذیری مناسب، توجه گسترده‌ای را به خود جلب کرده است [۲]. پلی لاکتیک اسید به دلیل ماهیت گرمانرمی علاوه بر قابلیت بازیافت، توانایی شکل‌دهی مناسبی در فرآیندهای مختلف از جمله اکستروژن، قالب‌گیری و چاپ سه‌بعدی دارد [۳]. از این رو این پلیمر به‌عنوان جایگزینی امیدوارکننده برای پلاستیک‌های مبتنی بر نفت در صنایع مختلف، از جمله بسته‌بندی، زیست پزشکی و چاپ سه‌بعدی، به شمار می‌آید [۱]. در سال‌های اخیر، کاربرد PLA در فناوری‌های تولید افزایشی، به‌ویژه در صنعت مبلمان زیستی با ویژگی‌های ظاهری شبیه چوب، مقاوم و

² Wood flour (WF)

¹ Polylactic acid (PLA)

ذرات چوب در ماتریس ABS، کاهش حفرات و بهبود چسبندگی بین فازی را به همراه داشت. بر این اساس، اکستروژن چندمرحله‌ای در برخی کامپوزیت‌های پلیمری با پایه‌ی نفتی به‌عنوان رویکردی کارآمد برای بهبود کیفیت چاپ سه‌بعدی معرفی شده است. با این حال، باید توجه داشت که پلیمرهای زیستی مانند PLA به دلیل ساختار شیمیایی و حساسیت حرارتی بالا، رفتار متفاوتی نسبت به پلیمرهای ساخته شده از منابع فسیلی از خود نشان می‌دهند. در کامپوزیت‌های زیستی تکرار فرآیند اکستروژن می‌تواند علاوه بر تأثیر بر پراکنش ذرات، باعث تخریب جزئی زنجیره‌های پلیمری و کاهش گرانبوی شود [۱۷] و به این ترتیب، تغییرات نامطلوبی در خواص ماده رخ می‌دهد [۱۸]. از این‌رو، در پژوهش حاضر، فرآیند دو بار اکستروژن نه به‌عنوان راهبرد بهبود، بلکه به‌منظور ارزیابی علمی اثر تکرار فرآیند بر پراکنش، چسبندگی بین فازی و انسجام ساختاری در کامپوزیت‌های زیستی PLA-MCC مورد مطالعه قرار گرفت تا رابطه سطح بهینه‌ی فرآیند اکستروژن و کیفیت مورفولوژی کامپوزیت‌های زیستی تبیین شود و روش بهینه اکستروژن مواد اولیه PLA-WF-MCC جهت چاپ سه‌بعدی کامپوزیت‌های زیستی مشخص گردد.

علاوه بر شرایط فرآیند اکستروژن، مسیر فرآیند چاپ سه‌بعدی نیز تأثیر مستقیمی بر ریز ساختار و میزان تخلخل کامپوزیت‌های زیستی بر پایه‌ی PLA دارد. در این میان، دو مسیر اصلی فرآیندی چاپ اکستروژن شامل روش ساخت فیلامنت ذوب شده (FFF)^۵ و گرانول ذوب شده^۶ (FGF) به‌عنوان دو رویکرد رایج در چاپ کامپوزیت‌های پلیمری و زیست‌پایه مطرح هستند [۱۹]. روش چاپ FGF از نظر خواص مکانیکی کامپوزیت زیستی (مثل استحکام کششی و انعطاف‌پذیری) و ویژگی‌های مورفولوژی (مثل یکنواختی و یکپارچگی) عملکرد بهتری دارد [۱۹]. در روش FFF تولید فیلامنت از گرانول‌ها زمان‌بر است و ممکن است موجب تخریب حرارتی مواد، به‌ویژه PLA، شود که بر کیفیت قطعات نهایی اثر منفی می‌گذارد؛ اما در روش FGF، گرانول‌ها مستقیماً به چاپگر تغذیه شده و این امر موجب کاهش

مناسب، ظاهر طبیعی و سازگاری بالا با محیط‌زیست را فراهم می‌سازند [۹]. در کنار آن پرکننده‌های طبیعی دیگر، مانند میکرو بلورهای سلولز^۳ (MCC) با داشتن سطح ویژه زیاد و قابلیت تشکیل پیوند هیدروژنی با زنجیره‌های PLA، به بهبود خواص مکانیکی و ساختاری کامپوزیت کمک می‌کند [۱۰]. MCC در کامپوزیت‌ها می‌تواند به‌طور قابل توجهی ساختار مورفولوژی و خواص مکانیکی این کامپوزیت‌ها را بهبود بخشد، به‌ویژه زمانی که ذرات MCC به‌طور یکنواخت در ماتریس پلیمری توزیع شده و سطح تماس بالا بین تقویت‌کننده و ماتریس ایجاد شود. در این حالت، ارتباط بهتر بین اجزای کامپوزیت موجب بهبود خواص کلی مخلوط می‌شود [۱۱]. به این ترتیب، پراکندگی یکنواخت ذرات MCC به‌عنوان عاملی کلیدی در بهبود ویژگی‌های کامپوزیت‌های زیستی PLA-MCC شناخته می‌شود [۱۲]. با وجود این مزایا، یکی از چالش‌های اساسی در تولید کامپوزیت‌های زیستی PLA-MCC، نقش مسیر فرآیندی بر ریزساختار و پراکنش تقویت‌کننده‌ها و پرکننده‌ها است. استفاده از اکستروژن دو مارپیچه به‌عنوان یک روش پیشرفته برای ترکیب و اختلاط یکنواخت ذرات تقویت‌کننده در ماتریس پلیمری، می‌تواند به بهبود توزیع آن‌ها در داخل کامپوزیت کمک کند [۱۳]. این فرآیند به‌ویژه برای بهبود خواص ریز ساختار و مورفولوژیکی کامپوزیت‌های زیستی مؤثر است [۱۴]. در مطالعات اخیر پیرامون کامپوزیت‌های پلیمری، به ویژه در پژوهش [۱۵]، نشان داده شده است که تکرار فرآیند اکستروژن می‌تواند تأثیر قابل توجهی بر ریز ساختار و مورفولوژی این مواد داشته باشد. نتایج این پژوهش بیانگر آن بود که اکستروژن چندمرحله‌ای با افزایش شدت برش و بهبود پراکنش فاز تقویت‌کننده، موجب یکنواختی بیشتر، کاهش تجمع ذرات و بهبود چسبندگی بین فازی در ماتریس پلیمری می‌شود. در همین راستا، در مطالعه‌ی Huang و همکاران (۲۰۲۱)، اثر ترکیب آرد چوب و مراحل مختلف اختلاط بر قابلیت چاپ پذیری و خواص مکانیکی کامپوزیت‌های آکریلونیتریل بوتادین استایرن^۴ (ABS)-آرد چوب مورد بررسی قرار گرفت [۱۶]. یافته‌ها نشان داد که انجام دو بار اکستروژن، پراکنش یکنواخت‌تر

^۵ Fused Filament Fabrication (FFF)^۶ Fused Granulate Fabrication (FGF)^۳ Microcrystalline Cellulose (MCC)^۴ Acrylonitrile Butadiene Styrene

در دمای ۷۰ درجه سانتی‌گراد و به مدت ۲۴ ساعت پیش خشک‌سازی گردیدند. پس از خشک‌کردن، کلیه مواد تا زمان فرآیند اکستروژن در ظروف دربسته و عاری از رطوبت نگهداری شدند تا از جذب مجدد رطوبت جلوگیری شود.

روش‌های اجرایی تحقیق

طرز تهیه کامپوزیت‌های زیستی

برای تهیه کامپوزیت‌های زیستی، ابتدا گرانول‌های پلی‌لاکتیک‌اسید PLA به‌عنوان ماتریس اصلی وزن‌کشی شدند. سپس، WF به میزان ۵ درصد وزنی نسبت به وزن کل کامپوزیت محاسبه و افزوده شد. مقدار MCC نیز به میزان ۵ درصد وزنی نسبت به وزن پلیمر PLA محاسبه و به مخلوط اضافه گردید. به‌طور مشخص، برای تهیه هر ۱ کیلوگرم کامپوزیت زیستی، مقدار ۵۰ گرم WF (۵ درصد وزنی نسبت به وزن کل کامپوزیت)، ۴۷٫۵ گرم MCC (۵ درصد وزنی نسبت به وزن PLA) و ۹۰۲٫۵ گرم گرانول PLA مورد استفاده قرار گرفت. کلیه مواد با استفاده از ترازوی دیجیتال با دقت مناسب وزن‌کشی شده و پیش از فرآیند اکستروژن به‌صورت یکنواخت مخلوط شدند. به‌منظور دستیابی به اختلاط یکنواخت و توزیع مناسب فازهای تقویت‌کننده و پرکننده، مواد در اکسترودر دو مارپیچه همسو گرد (Werner & Pfleiderer)، مدل (ZSK25) مطابق شکل ۱-الف بارگذاری و فرآوری شدند. فرآیند اکستروژن تحت شرایط کنترل‌شده انجام گرفت؛ دمایی مناطق مختلف اکسترودر بین ۲۱۰-۱۶۰ درجه سانتی‌گراد تنظیم شد تا ذوب تدریجی PLA و پراکنش مناسب MCC و WF تضمین گردد. دمای گلوگاه تغذیه ۴۵ درجه سانتی‌گراد، فشار مذاب حدود ۸ بار و سرعت چرخش پیچ‌ها ۸۰ دور بر دقیقه در نظر گرفته شد تا پایداری جریان، اختلاط مؤثر و حداقل تخریب حرارتی مواد حاصل شود. پس از ذوب و اختلاط کامل، فیلامنت‌های اولیه تولیدشده و پس از عبور از کشنده، خنک کاری شدند (شکل ۱-الف).

زمان تولید، هزینه کمتر و جلوگیری از تخریب حرارتی می‌شود. علاوه بر این، امکان استفاده از مواد بازیافتی و تنوع بیشتر مواد فراهم می‌شود [۲۰]، همچنین روش FGF با هزینه کمتر و امکان استفاده از ضایعات چوب، زمینه‌ساز چاپ قطعات در مقیاس بزرگ نظیر صندلی شده است [۵]، از این رو در این تحقیق علاوه بر بررسی اثر تکرار اکستروژن، مقایسه‌ی دقیق دو مسیر چاپ FFF و FGF به تبیین نقش ریزساختار در کامپوزیت چاپ‌شده از PLA-WF-MCC کمک می‌کند و انتظار می‌رود چاپ کامپوزیت‌های زیستی PLA-WF-MCC به روش FGF، به دلیل کاهش تنش‌های حرارتی و تداوم اکستروژن و کاهش تخلخل، نه‌تنها منجر به مورفولوژی متراکم‌تر و یکنواخت‌تر شود بلکه ساختاری پایدارتر و مناسب‌تر برای چاپ صندلی را فراهم کند.

مواد و روش‌ها

تهیه و آماده‌سازی مواد اولیه

گرانول‌های PLA رده Ingeo 2003D و محصول NatureWorks آمریکا از شرکت مجیک فیلامنت واقع در پژوهشگاه پلیمر و پتروشیمی ایران تهیه شد و به‌عنوان ماتریس استفاده شد. MCC از شرکت دانش‌بنیان نانو نوین پلیمر و آرد چوب راش از شرکت چوب پلاستیک دکوود برای تولید کامپوزیت با PLA به کار رفتند. آرد چوب ابتدا بال‌میل آسیاب و ذرات بزرگ‌تر از ۱۵۰ میکرومتر جدا شدند تا پراکنش یکنواخت و جلوگیری از گرفتگی در فرایندها اکستروژن و چاپ سه‌بعدی تضمین شود. به‌منظور حذف رطوبت جذب‌شده و جلوگیری از ایجاد حفرات و ناپیوستگی‌های ساختاری در حین فرآیند اکستروژن و چاپ سه‌بعدی، WF و MCC در آون هوای گرم و در دمای ۱۰۵ درجه سانتی‌گراد به مدت ۲۴ ساعت خشک شدند. همچنین، گرانول‌های پلی‌لاکتیک‌اسید PLA به دلیل حساسیت حرارتی،



ب



الف

شکل ۱- تولید فیلامنت کامپوزیت زیستی PLA-WF-MCC با دستگاه اکسترودر دو مارپیچه (الف) و دستگاه خردکن فیلامنتها (ب).

مرحله‌ای تحت SEM قرار گرفته‌اند. در روش سوم، بخش دیگری از فیلامنتها ابتدا به گرانول تبدیل شده (شکل ۱-ب) سپس برای چاپ سه‌بعدی استفاده شده و پس از چاپ، برای آنالیز SEM جهت ارزیابی ویژگی‌های مورفولوژی، میزان تخلخل و وضعیت لایه‌های چاپ شده مورد بررسی قرار گرفتند. در روش چهارم، گرانولها با استفاده از دستگاه اکسترودر تک مارپیچه به فیلامنتهایی با قطر یکنواخت تبدیل شدند (شکل ۳)، سپس این فیلامنتها برای چاپ سه‌بعدی و تحلیل SEM ارسال شدند.

تقسیم بندی و آماده‌سازی نمونه‌های کامپوزیتی

زیستی

پس از عبور فیلامنتها از دستگاه اکسترودر دو مارپیچه، این فیلامنتها به چهار روش مجزا تقسیم شدند که جزئیات آنها در جدول ۱ آورده شده است. هر یک از این روشها بر اساس ویژگیها و اهداف علمی مشخص، برای بررسی ویژگی‌های مورفولوژی به کار گرفته شده‌اند. در روش اول، بخشی از فیلامنتها برای تحلیل میکروسکوپ الکترونی روبشی^۷ (SEM) ارسال گردیدند. در روش دوم، قسمتی از فیلامنتها دوباره از اکسترودر عبور کرده و برای بررسی ریزساختار و تأثیرات فرآیند دو

جدول ۱- روش‌های فرآیندی و اهداف علمی

روش‌ها	ترکیب مواد	شرح فرآیند	هدف علمی
۱	PLA+WF + MCC	اکستروژن اولیه؛ بدون گرانول‌سازی یا چاپ	بررسی پراکنش MCC، همگنی ساختاری پس از اکستروژن از سطح شکست فیلامنتها
۲	PLA+WF + MCC	اکستروژن اولیه + گرانول‌سازی + اکستروژن ثانویه	ارزیابی اثر اکستروژن مجدد بر ریز ساختار و جدایی بین فازی MCC و آرد چوب از PLA در فیلامنتها
۳	PLA+WF + MCC	اکستروژن اولیه + گرانول‌سازی + چاپ به روش گرانولی	بررسی اثر چاپ FGF بر ریز ساختار، تراکم و میزان تخلخل از سطوح شکست نمونه‌های چاپ شده
۴	PLA+WF + MCC	اکستروژن اولیه + گرانول‌سازی + اکستروژن تک مادرون فیلامنت‌ساز-چاپ به روش FFF	بررسی اثر چاپ FFF بر ریز ساختار، تراکم و میزان تخلخل از سطوح شکست نمونه‌های چاپ شده

⁷ Scanning Electron Microscopy(SEM)

فرایند مذاب فیلامنت‌های کامپوزیت زیستی از دستگاه اکستروژن خارج شدند (شکل ۲-ب). قطر فیلامنت‌های اکستروژن شده با استفاده از کولیس دیجیتال اندازه‌گیری شد. قطر استاندارد فیلامنت‌های کامپوزیتی زیستی مورد استفاده در دستگاه چاپ سه‌بعدی ۱/۷۵ میلی‌متر با تغییرات ۰/۰۵ میلی‌متر است.



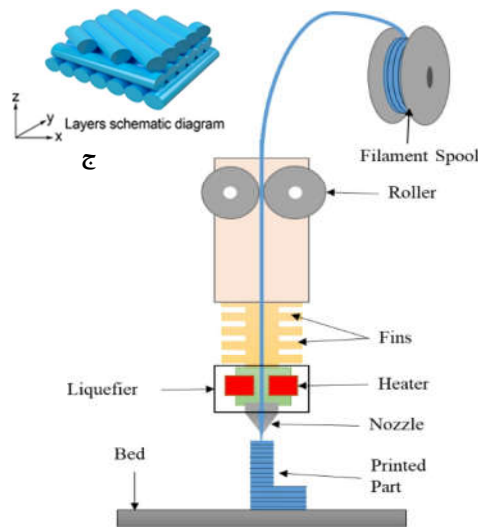
ب



الف

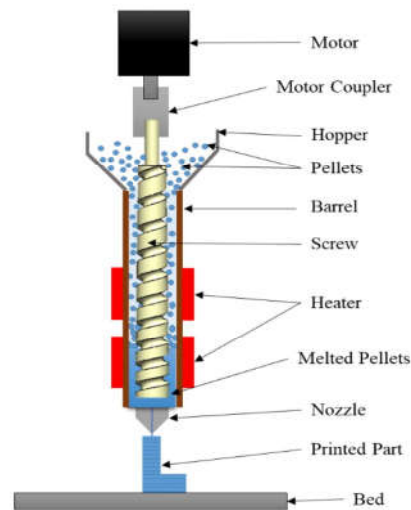
شکل ۲- دستگاه اکستروژن تک مارپیچه فیلامنت ساز (الف) و فیلامنت‌ها تولید شده دستگاه اکستروژن تک مارپیچه (ب).

روی یک بستر قرار می‌گیرند. همچنین در روش FGF، گرانول‌های ذوب‌شده به لایه‌های پیوسته تبدیل می‌شوند. این روش‌ها امکان ساخت قطعات پیچیده مانند صندلی‌های مدرن با دقت بالا را فراهم می‌آورند. نمودار شما تیک فرآیندهای مختلف چاپ سه‌بعدی مواد در شکل ۳ نشان داده شده است. همچنین، نمودار شما تیک لایه‌ها در شکل ۳-ج نیز به‌وضوح نمایش داده می‌شود.



ب

چاپ سه‌بعدی کامپوزیت‌های زیستی مطابق آنچه در مقدمه شرح داده شد، دو تکنیک FFF و FGF برای چاپ سه‌بعدی کامپوزیت‌های زیستی در این مطالعه به کار گرفته شد. در این روش‌ها، نمونه‌ها به‌صورت لایه‌لایه ساخته می‌شوند تا ساختار نهایی به تدریج و با دقت بالا ایجاد گردد. در فرآیند FFF، فیلامنت‌ها از طریق فرآیند اکستروژن ذوب شده و به‌صورت لایه به لایه بر



الف

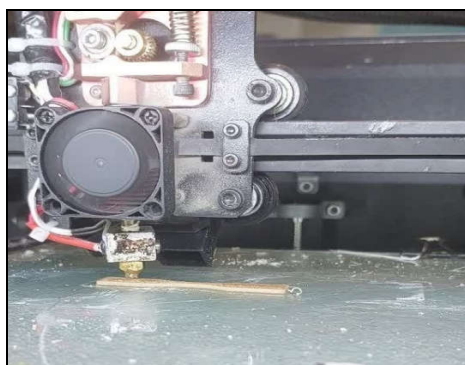
شکل ۳- شما تیک فرآیند چاپ فیلامنت ذوب شده (الف)، فرآیند چاپ گرانول ذوب شده (ب) [۲۱] و (ج) نمودار شما تیک لایه‌ها [۲۲].

استفاده از چاپگر سه بعدی Tartan 3D ساخت شرکت مهندسی تارتن سه بعدی انجام شد. همچنین، نمونه‌های فیلامنتی با بهره‌گیری از چاپگر سه بعدی Sizan 2 ساخت شرکت ایرانی سیزان پردازش کویر تولید گردیدند. کلیه فرآیندهای چاپ تحت شرایط کنترل شده و با تنظیمات بهینه انجام شد تا از تکرارپذیری نتایج و یکنواختی کیفیت نمونه‌های چاپ شده اطمینان حاصل گردد. پارامترهای مرتبط با دمای نازل و بستر، سرعت چاپ و سایر شرایط فرآیندی مطابق مقادیر ارائه شده در جدول ۲ تنظیم گردید تا دقت و کیفیت نمونه‌ها به حداکثر مقدار ممکن برسد. در شکل ۴، نمونه در حال چاپ سه بعدی به روش FFF قابل مشاهده است.

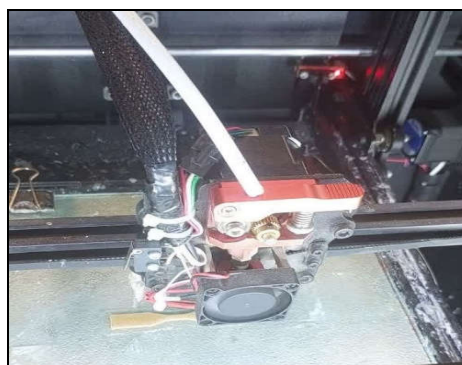
کامپوزیت‌های زیستی تولید شده توسط فرآیند اکستروژن در ظروف دربسته و عاری از رطوبت نگهداری شدند. با این حال، به منظور اطمینان بیشتر و با توجه به احتمال جذب رطوبت پس از فرآیند اکستروژن، گرانول‌ها و فیلامنت‌ها پیش از انجام فرآیند چاپ سه بعدی مجدداً در دمای ۶۰ درجه سانتی‌گراد به مدت ۶ ساعت خشک شدند تا رطوبت‌گیری کامل صورت گیرد و شرایط یکنواخت و پایدار برای چاپ فراهم شود. قبل از فرآیند چاپ، نمونه‌های آزمون‌ی توسط نرم‌افزار اتوكد طراحی شده و در قالب فایل STL ذخیره شدند. این فایل‌ها سپس به وسیله نرم‌افزار Slic3r به G کد تبدیل گردیدند. G کد به منظور هدایت چاپگر سه بعدی برای تولید نمونه‌ها به کار گرفته شد. فرآیند چاپ سه بعدی نمونه‌های گرانولی با

جدول ۲- پارامترهای چاپ و مقدار متناظر آن‌ها.

مقدار	پارامترهای چاپ
۰/۶	قطر نازل (میلی‌متر)
۲۱۰	دمای نازل (درجه سانتی‌گراد)
$0.05 \pm 1/75$	قطر فیلامنت (میلی‌متر)
۱۰۰	تراکم پرکننده (درصد)
۴۰	سرعت چاپ (میلی‌متر/ثانیه)
۰/۲	ضخامت لایه (میلی‌متر)
۶۰	دمای بستر چاپ
+۴۵/-۴۵	زاویه پرینت (درجه)



ب



الف

شکل ۴- نمونه‌ی کامپوزیت زیستی در حال چاپ به روش FFF از نمای بالا (الف) و روبرو (ب).

بار اکستروژن شده و نمونه‌های چاپ شده به روش‌های FFF و FGF تهیه شدند. تصویربرداری با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی (VEGA) ساخت شرکت TESCAN (شکل ۵)، جمهوری چک، انجام گرفت. پیش

تحلیل ریز ساختار و مورفولوژی نمونه‌ها با دستگاه SEM در این پژوهش، تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی (SEM) از دو دسته نمونه شامل فیلامنت‌های یک‌بار و دو

پراکندگی ذرات، حفرات، چسبندگی بین فازی و تراکم ساختاری در نمونه‌های اکستروژن شده و چاپ‌شده مورد استفاده قرار گرفت و در ادامه جهت مقایسه ویژگی‌های مورفولوژی و تراکم بین دو گروه تحلیل شدند.

از تصویربرداری، نمونه‌ها برای افزایش رسانایی سطحی با لایه‌ای نازک از طلا پوشش داده شدند. تصاویر در بزرگ‌نمایی‌های مختلف و در ولتاژ ۲۰ کیلوولت ثبت گردیدند. این تصاویر برای تحلیل ریزساختار، بررسی



شکل ۵- دستگاه میکروسکوپ الکترونی روبشی

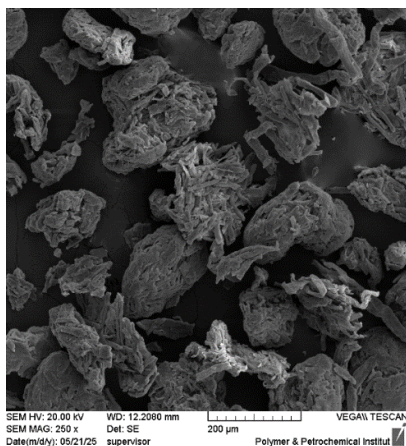
MCC از صدها نانوفیبریل سلولز منفرد تشکیل شده‌اند [۲۳].

تحلیل SEM فیلامنت‌های یک‌بار اکستروژن شده
از سطوح شکست فیلامنت‌های کامپوزیت زیستی PLA-WF-MCC یک‌بار اکستروژن شده جهت مطالعه برهمکنش‌های احتمالی بین اجزای مختلف و تخلخل آن‌ها مورد بررسی قرار گرفت. در شکل ۷، سطوح شکست کامپوزیت‌های زیستی یک‌بار اکستروژن شده نشان داده شده است.

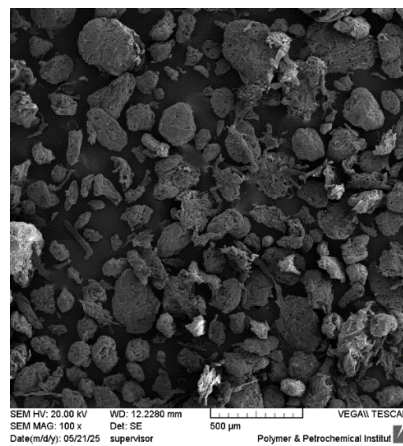
نتایج و بحث

مورفولوژی و ساختار MCC

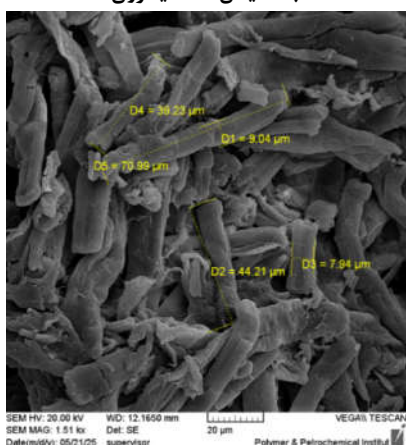
تصاویر SEM از ویژگی‌ها و ساختار MCC در مقیاس‌های ۵۰۰، ۲۰۰، ۵۰ و ۲۰ میکرون در شکل ۵ نشان داده شده است که در تصاویر با مقیاس‌های ۵۰ و ۲۰ میکرون (شکل ۶ ج و د) مشاهده می‌شود که ذرات MCC به صورت ساختارهای میله‌ای هستند. این ساختارهای میله‌ای دارای نسبت طول به عرض نسبتاً بالای هستند. تصاویر SEM نشان می‌دهند که MCC دارای مورفولوژی تجمع یافته بوده و ذرات آن به صورت متراکم و فشرده در کنار یکدیگر قرار گرفته‌اند. همچنین می‌توان برخی از نانوفیبریل‌ها را روی سطوح ذرات MCC مشاهده کرد که ممکن است گواهی بر این باشد که ذرات



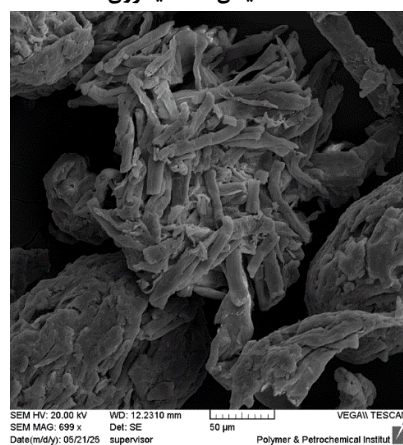
ب: مقیاس ۲۰۰ میکرون



الف: مقیاس ۵۰۰ میکرون



د: مقیاس ۲۰ میکرون

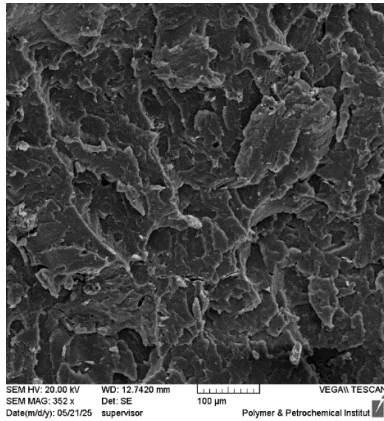


ج: مقیاس ۵۰ میکرون

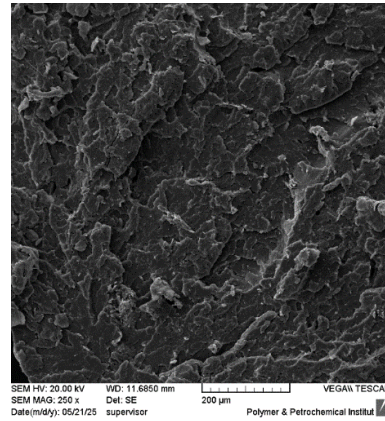
شکل ۶- تصاویر SEM از ظاهر و ویژگی‌های ساختاری MCC در بزرگ‌نمایی‌ها و مقیاس‌های مختلف (الف، ب، ج و د).

چسبندگی بین فازی در وضعیت مناسبی قرار دارد. همچنین، شکستگی‌ها و حفرات ناشی از ناپیوستگی‌های ساختاری بسیار ناچیز بوده و کیفیت مورفولوژی در سطح مطلوبی قرار دارد. این نتایج با گزارش‌های مشابه در حوزه توسعه فیلامنت‌های PLA-WF-MCC در توافق است [۱۵]. نتایج مشابهی نیز توسط Olonisakin و همکاران و Rasheed و همکاران در سال ۲۰۲۱ گزارش شده است [۲۴ و ۲۵]. که در آن‌ها هم پراکندگی یکنواخت MCC و عدم وجود تخلخل در کامپوزیت‌های مشابه مشاهده شده است.

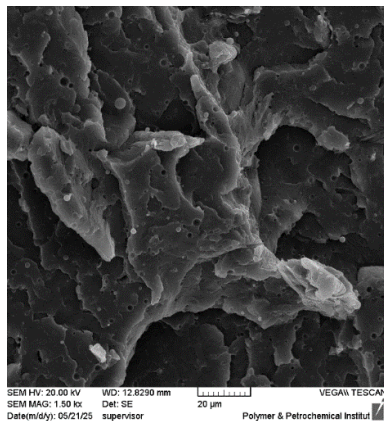
تصاویر فوق پراکندگی و در هم آمیختگی یکنواخت MCC را در ماتریس PLA به خوبی نشان می‌دهد. همچنین مرز مشخصی بین ماتریس پلیمری و توده‌های تشکیل شده از میکرو بلورهای سلولز وجود ندارد، به طوری که MCC به صورت توده‌هایی از میکرو بلورهای سلولز باقی نمانده است و این مسئله مشخص می‌کند که جداسازی در طول فرآیند اکستروژن رخ داده است و در هم آمیختگی بین ماتریس پلیمری و میکرو بلورهای سلولز به وجود آمده است. این مشاهدات نشان می‌دهد که پراکندگی همگن و چسبندگی مناسب بین MCC، WF و PLA برقرار بوده است و به وضوح مشاهده می‌شود که



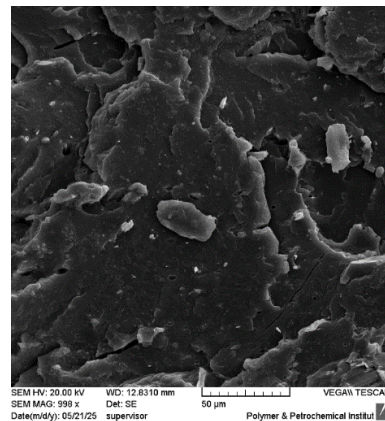
ب: مقیاس ۱۰۰ میکرون



الف: مقیاس ۲۰۰ میکرون



د: مقیاس ۲۰ میکرون



ج: مقیاس ۵۰ میکرون

شکل ۷- تصاویر SEM از سطوح شکست فیلامنت‌های کامپوزیت زیستی PLA-WF-MCC یک‌بار اکستروژن شده در بزرگ‌نمایی‌ها و مقیاس‌های مختلف (الف، ب، ج و د).

را می‌توان ناشی از حساسیت حرارتی بالاتر PLA دانست [۱۷]. به بیان دیگر، در حالی که اکستروژن چندمرحله‌ای در کامپوزیت‌های ساخته شده از پلیمرهای پایه نفتی به بهبود مورفولوژی منجر می‌شود [۱۶]، در کامپوزیت‌های زیستی لازم است تا بین افزایش اختلاط و جلوگیری از تخریب پلیمر تعادلی ظریف برقرار شود تا ساختاری همگن و مقاوم به دست آید.

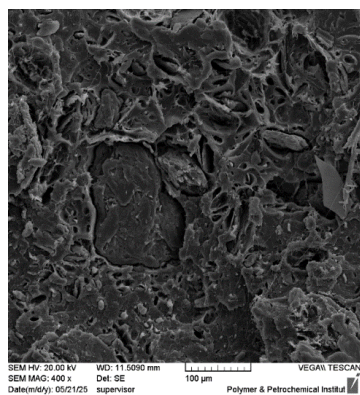
با این حال، تصاویر SEM نشان می‌دهند که به دلیل تخریب جزئی زنجیرهای پلیمری و کاهش ویسکوزیته، ساختار کامپوزیت دچار جدایش بین فازی و افزایش حفرات می‌شود. این نتیجه هرچند مطلوب از نظر مورفولوژی نبود، اما اهمیت زیادی از نظر علمی دارد؛ زیرا نشان می‌دهد که در سامانه‌های زیستی، برخلاف کامپوزیت‌های معمول، شدت فرآیند همیشه منجر به بهبود پراکنش نشده و پایداری شیمیایی پلیمر نقش محدودکننده‌ی اصلی را ایفا می‌کند؛ بنابراین، انتخاب

تحلیل SEM فیلامنت‌های دو بار اکستروژن شده
شکل ۸ تصاویر SEM از سطح شکست فیلامنت‌ها کامپوزیتی مورد مطالعه که دو بار اکستروژن شده است را در بزرگ‌نمایی‌ها و مقیاس‌های مختلف نشان می‌دهد. بررسی‌های مورفولوژی در پژوهش حاضر نشان داد که تکرار فرآیند اکستروژن در ترکیب PLA-WF-MCC، برخلاف برخی گزارش‌های پیشین نظیر مطالعه‌ی Huang و همکاران (۲۰۲۱) در مورد ABS/WF، منجر به بهبود پراکنش نمی‌شود [۱۶]. در مطالعه این محققان آمده است که دو بار اکستروژن کردن سبب توزیع یکنواخت‌تر آرد چوب و افزایش چسبندگی بین ABS و آرد چوب مشاهده شده است. این در حالی است که در کامپوزیت‌های زیستی، فرآیند اکستروژن مجدد موجب تخریب جزئی زنجیرهای PLA و کاهش ویسکوزیته آن می‌شود و نتایج تخریب باعث جدایش بین فازی و ایجاد حفرات ریز در نواحی مرزی فازها می‌شود [۱۷ و ۱۸]. این تفاوت رفتاری

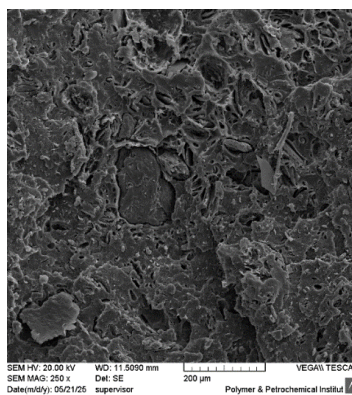
است؛ اما در نمونه‌های دو بار اکسترود شده، جدایش بین فازی و ایجاد تخلخل در شکل ۸ به‌وضوح قابل مشاهده است. چرا که ذرات WF در شکل ۸ (تصاویر الف، ب و ج) و MCC (تصاویر د، ه و و) به‌طور مجزا قابل مشاهده هستند، این تفاوت‌ها می‌تواند دلیلی اختلاط و پراکندگی بهتر ذرات در نمونه‌های یک‌بار اکسترود شده نسبت به دو بار اکسترود شده باشد.

سطح بهینه‌ی اکستروژن برای حفظ تعادل میان اختلاط و سلامت ساختاری، در طراحی مواد زیستی از اهمیت بالایی برخوردار است.

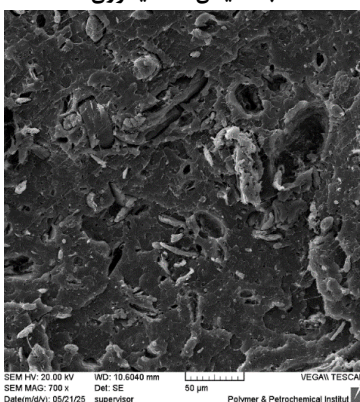
برای نمونه‌های یک‌بار اکسترود شده شکل ۷ نشان داد که به دلیل در هم آمیختگی بسیار بالا، ذرات MCC به‌طور مجزا قابل مشاهده نیستند، این امر حاکی از پراکندگی همگن و یکنواخت MCC در ماتریس PLA



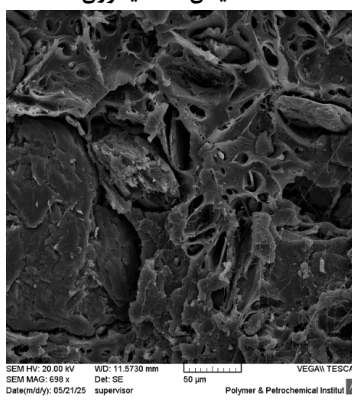
ب: مقیاس ۱۰۰ میکرون



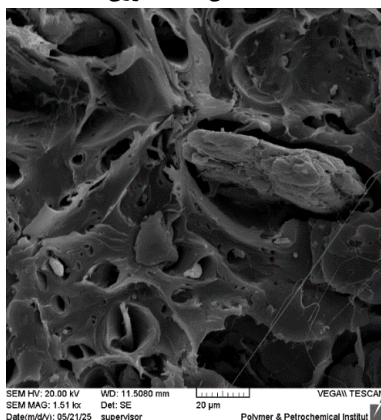
الف: مقیاس ۲۰۰ میکرون



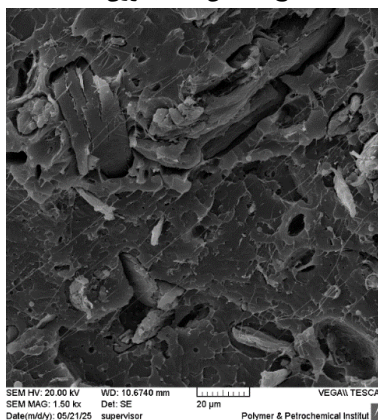
د: مقیاس ۵۰ میکرون



ج: مقیاس ۵۰ میکرون



و: مقیاس ۲۰ میکرون



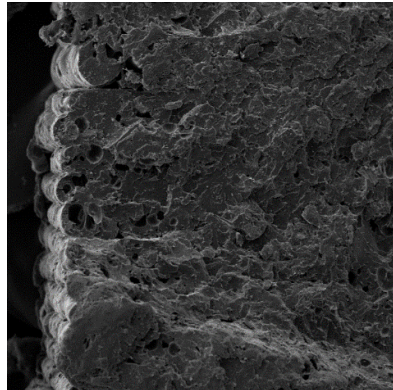
ه: مقیاس ۲۰ میکرون

شکل ۸- تصاویر SEM از سطوح شکست فیلامنت‌های کامپوزیت زیستی PLA-WF-MCC دو بار اکسترود شده در بزرگ‌نمایی‌ها و مقیاس‌های مختلف (الف، ب، ج، د، ه و و).

تحلیل SEM کامپوزیت‌های زیستی FFF

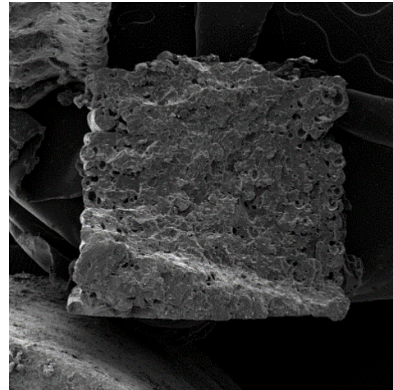
شکل ۹ تصاویر SEM از نمونه‌های چاپ شده به روش FFF را با بزرگ‌نمایی‌های مختلف نشان می‌دهد دیده می‌شود که نمونه‌های ساخته‌شده از فیلامنت‌ها دارای حفره‌های کروی (Tomec و همکاران ۲۰۲۴) و بعضاً مثلثی (Duty و همکاران ۲۰۱۷، Liu و همکاران ۲۰۲۳) هستند [۱۰، ۲۷ و ۲۲] و به‌طورکلی تخلخل قطعات چاپ‌شده از فیلامنت‌ها نسبت به تخلخل قطعات چاپ‌شده از گرانول‌ها که در شکل ۱۰ نشان داده شده است بیشتر است. بخش عمده‌ای از این تخلخل به حفره‌های از پیش موجود در فیلامنت‌ها مربوط می‌شود، چرا که در فرآیند چاپ هیچ گاز زدایی در نازل اکستروژن انجام نمی‌شود و حباب‌های هوا از فیلامنت‌ها به قطعه چاپ‌شده منتقل می‌شوند [۱۰]. علاوه بر این، رطوبت موجود در فیلامنت‌ها و تشکیل گازها در حین چاپ می‌تواند موجب افزایش تخلخل در قطعات چاپ‌شده گردد [۱۵]. همچنین، عواملی مانند جریان غیریکنواخت مواد و گرفتگی جزئی نازل چاپگر به‌ویژه در اثر حضور ذرات چوب نیز می‌توانند به افزایش تخلخل کمک کنند. این مشاهدات با نتایج سایر تحقیقات مشابه هم‌راستا است و نشان می‌دهد که وجود حفره‌ها در ساختار کامپوزیت‌های چاپ شده سه‌بعدی می‌تواند خواص مکانیکی آن‌ها را کاهش دهد [۱۰]. مطابق با گزارش Sohilpour و همکاران (۲۰۲۰)، افزایش گرانروی مذاب و کاهش جریان پذیری ناشی از افزودن نانولوله‌های کربنی، نفوذ بین‌لایه‌ای را محدود کرده و منجر به افزایش تخلخل و افت کیفیت مورفولوژیکی قطعات چاپ‌شده می‌شود [۲۹]. رفتار مشابهی در پژوهش حاضر نیز مشاهده شد؛ به‌طوری‌که حضور آرد چوب در کامپوزیت‌های زیستی PLA با افزایش گرانروی مذاب، کاهش جریان پذیری و کاهش تر شوندگی، چسبندگی بین‌لایه‌ای را تضعیف کرده و موجب تشکیل حفرات داخلی، به‌ویژه در نمونه‌های چاپ‌شده به روش FFF، گردید [۳۰].

بنابراین نمونه‌های یک بار اکستروژن شده، به دلیل برخورداری از مورفولوژیکی مناسب شامل پیراکنش یکنواخت و همگن اجزا در ماتریس پلیمری، به‌عنوان مواد اولیه برای فرآیندهای چاپ سه‌بعدی به روش‌های FFF و FGF انتخاب شدند. در مقابل، نمونه‌های دو بار اکستروژن شده به دلیل ایجاد مشکلات ساختاری نظیر جدایش بین فاز و تشکیل حفرات میکروسکوپی در نواحی مرزی فازها که ناشی از تخریب جزئی زنجیرهای پلیمری و کاهش ویسکوزیته است، برای ساخت نمونه مناسب تشخیص داده نشدند. با این حال، وجود حفره‌ها در ساختار کامپوزیت‌ها بعد از چاپ سه‌بعدی همچنان یک چالش مهم است. حفره‌ها معمولاً به دلایل مختلفی ایجاد می‌شوند. یکی از دلایل عمده، تشکیل حفره‌ها در حین فرآیند اکستروژن است. این حفره‌ها ممکن است در هنگام اکستروژن رشته ذوب‌شده از نازل تشکیل شوند و با خروج مذاب از قالب اکستروژر و تأثیر اختلاف فشار بین داخل و خارج قالب اکستروژر، اندازه آن‌ها افزایش یابد. علت دیگر می‌تواند کمبود گاز زدایی در نازل چاپگر باشد که موجب انتقال حباب‌های هوا از رشته‌ها به قطعه چاپ‌شده می‌شود. علاوه بر این، رطوبت موجود در فیلامنت‌ها و تشکیل گازها در حین فرآیند چاپ نیز می‌توانند به ایجاد حفره‌ها کمک کنند [۲۵]. نتایج این محققان نشان داد که علی‌رغم وجود حفرات، پیوند بین ذرات PLA و MCC به‌طور کامل و قوی قابل مشاهده می‌باشد. این مشاهدات با نتایج تحقیق Tomec و همکاران (۲۰۲۴) نیز در توافق است که به تأثیر افزودن MCC بر خواص فیلامنت‌های PLA-WF برای چاپ سه‌بعدی پرداخته و نشان دادند پراکندگی مؤثر MCC موجب بهبود خواص ساختاری این فیلامنت‌ها می‌شود [۱۰].



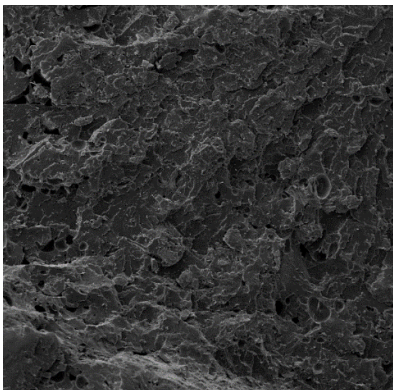
SEM HV: 20.00 kV WD: 13.8480 mm VEGA\\ TESCAN
SEM MAG: 75 x Det: SE
Date(m/d/y): 05/21/25 supervisor Polymer & Petrochemical Institut

ب: مقیاس ۵۰۰ میکرون



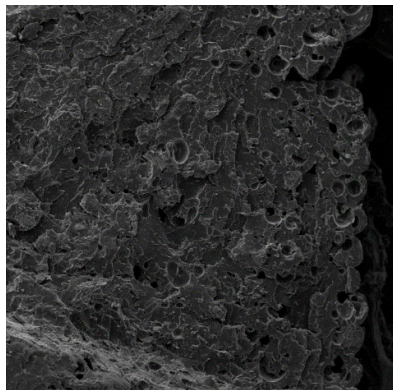
SEM HV: 20.00 kV WD: 11.9830 mm VEGA\\ TESCAN
SEM MAG: 50 x Det: SE
Date(m/d/y): 05/21/25 supervisor Polymer & Petrochemical Institut

الف: مقیاس ۱ میلی متر



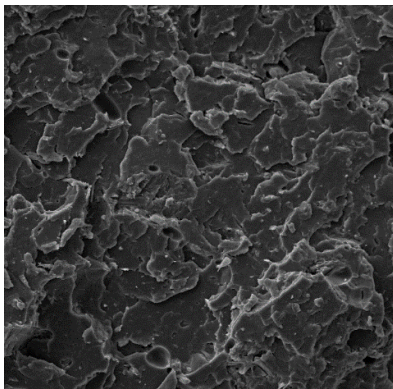
SEM HV: 20.00 kV WD: 13.8480 mm VEGA\\ TESCAN
SEM MAG: 80 x Det: SE
Date(m/d/y): 05/21/25 supervisor Polymer & Petrochemical Institut

د: مقیاس ۵۰۰ میکرون



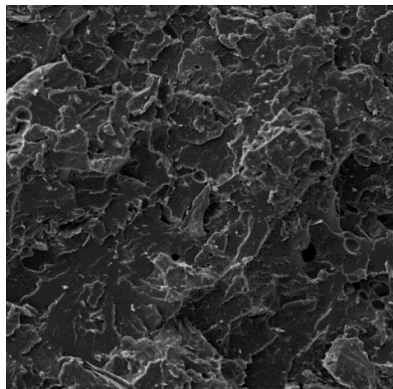
SEM HV: 20.00 kV WD: 13.8480 mm VEGA\\ TESCAN
SEM MAG: 80 x Det: SE
Date(m/d/y): 05/21/25 supervisor Polymer & Petrochemical Institut

ج: مقیاس ۵۰۰ میکرون



SEM HV: 20.00 kV WD: 13.7040 mm VEGA\\ TESCAN
SEM MAG: 350 x Det: SE
Date(m/d/y): 05/21/25 supervisor Polymer & Petrochemical Institut

و: مقیاس ۱۰۰ میکرون



SEM HV: 20.00 kV WD: 13.9530 mm VEGA\\ TESCAN
SEM MAG: 200 x Det: SE
Date(m/d/y): 05/21/25 supervisor Polymer & Petrochemical Institut

ه: مقیاس ۲۰۰ میکرون

شکل ۹- تصاویر SEM از سطوح شکست نمونه‌ی چاپ شده سه بعدی کامپوزیت زیستی PLA-WF-MCC به روش FFF در بزرگ‌نمایی‌ها و مقیاس‌های مختلف (الف، ب، ج، د، ه و و).

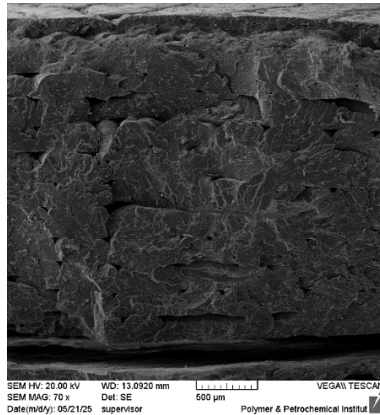
روش FFF است (شکل‌های ۹ و ۱۰). به منظور ارائه تحلیل کمی از نتایج مورفولوژیکی، مقایسه‌ای بین تصاویر میکروسکوپی در مقیاس ۵۰۰ میکرون نمونه‌های چاپ‌شده به دو روش انجام شد. مطابق با تصاویر SEM در

تحلیل SEM کامپوزیت‌های زیستی FGF

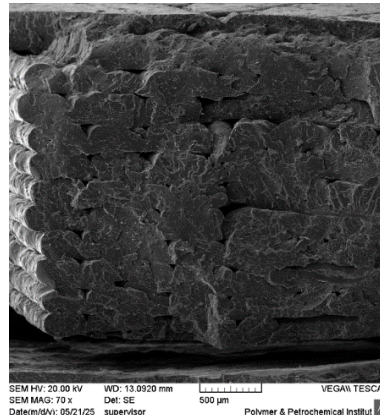
بررسی تصاویر SEM نشان داد که در نمونه‌های چاپ‌شده به روش FGF، تعداد حفرات تشکیل‌شده بین لایه‌ها به‌طور محسوسی کمتر از نمونه‌های چاپ‌شده به

تعداد تخلخل‌ها حدود ۴۰ حفره برآورد گردید که بیانگر درصد کمتر تخلخل و ساختار متراکم‌تر این نمونه‌ها است. این نتایج نشان‌دهنده بهبود کیفیت ساختاری و کاهش ناپیوستگی‌های داخلی در روش چاپ FGF نسبت به روش FFF می‌باشد.

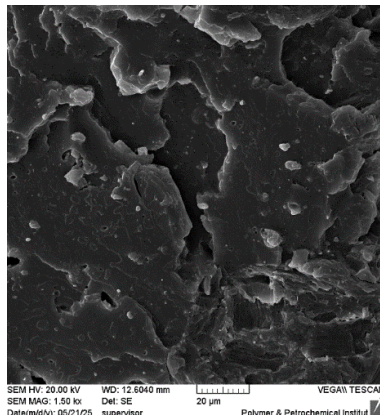
شکل ۹ (ب، ج و د) و در مقیاس ۵۰۰ میکرون، در نمونه‌های چاپ‌شده به روش FFF، تعداد تخلخل‌ها به‌طور تقریبی حدود ۶۰ حفره با شکل‌های کروی و مثلثی مشاهده شد. در مقابل، در نمونه‌های چاپ‌شده به روش FGF، مطابق با شکل ۱۰ (الف و ب) و در همان مقیاس،



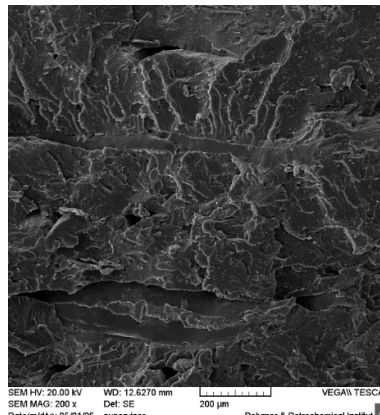
ب: مقیاس ۵۰۰ میکرون



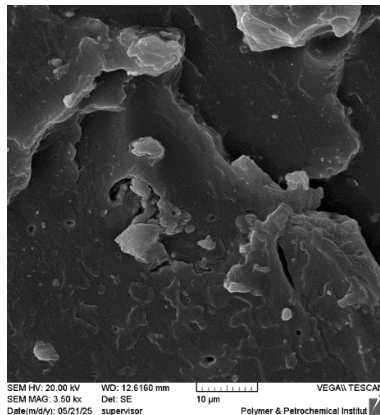
الف: مقیاس ۵۰۰ میکرون



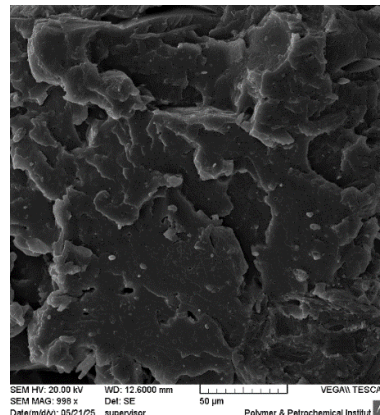
د: مقیاس ۵۰ میکرون



ج: مقیاس ۲۰۰ میکرون



و: مقیاس ۱۰ میکرون



ه: مقیاس ۵۰ میکرون

شکل ۱۰- تصاویر SEM از سطوح شکست نمونه‌ی چاپ شده سه بعدی کامپوزیت زیستی PLA-WF-MCC به روش FGF در بزرگ‌نمایی‌ها و مقیاس‌ها مختلف (الف، ب، ج، د، ه و و).

کاهش تخلخل‌ها در نمونه‌های گرانولی است. روش FGF به دلیل کاهش تنش‌های حرارتی و تداوم فرآیند اکستروژن، نه تنها منجر به ساختاری متراکم‌تر و یکنواخت‌تر می‌شود، بلکه ساختاری پایدارتر و مناسب‌تر برای چاپ صندلی فراهم می‌آورد. به همین دلیل، برای ساخت صندلی با هدف بهینه‌سازی کیفیت ساختاری، روش FGF انتخاب گردید. در نهایت، نمونه‌ی صندلی در ابعاد کوچک (شکل ۱۱) با موفقیت به‌وسیله‌ی این روش چاپ شد که نشان‌دهنده‌ی قابلیت بالای این تکنیک در تولید قطعات زیستی با ویژگی‌های مطلوب است. در شکل ۱۱ تصاویری از نماهای مختلف صندلی چاپ شده به روش FGF با کامپوزیت زیستی PLA-WF-MCC نشان داده شده است. تصاویر از سمت راست به چپ به ترتیب تصویر صندلی در حالت ایستاده (الف)، تصویر سمت چپ صندلی در حالت خوابیده (ب)، تصویر سمت چپ و پشت صندلی در حالت خوابیده (ج) و تصویر سمت چپ صندلی در حالت ایستاده (د) می‌باشد. نتایج این بخش نشان می‌دهد که استفاده از کامپوزیت‌های حاصل از یک بار فرآیند اکستروژن به‌عنوان خوراک در روش چاپ سه‌بعدی FGF، در کنار ریزساختار بهینه کامپوزیت زیستی PLA-WF-MCC، نقش تعیین‌کننده‌ای در بهبود مورفولوژی، کاهش تخلخل و دستیابی به ساختارهای پایدار و کاربرپذیر برای تولید و چاپ صندلی دارد.

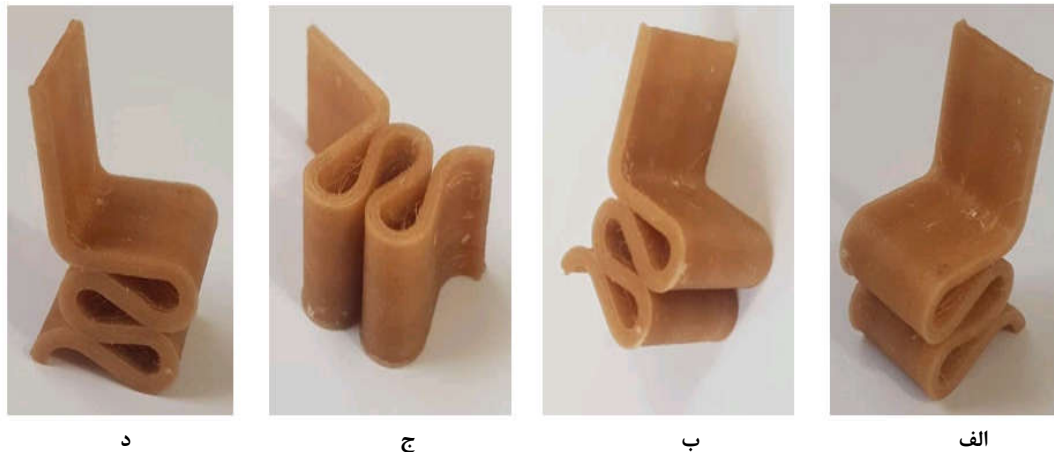
نتیجه‌گیری

در نمونه‌های یک‌بار اکستروژن شده، پراکندگی MCC به‌طور یکنواخت در ماتریس PLA مشاهده شد. این توزیع یکنواخت باعث بهبود چسبندگی بین فازی و انسجام ساختاری کامپوزیت‌های زیستی شد که این یافته با گزارش‌های مشابه در زمینه کامپوزیت‌های چوب-PLA هم‌راستا است. برخلاف مطالعات قبلی که نشان داده بودند اکستروژن دو بار در کامپوزیت‌های با پلیمرهای نفتی باعث بهبود پراکندگی ذرات می‌شود، در کامپوزیت‌های زیستی PLA-WF-MCC، تکرار فرآیند اکستروژن باعث ایجاد جدایش بین فازی و حفرات شد.

علل ایجاد حفرات، به‌ویژه حفرات مثلثی شکل، می‌تواند به نقص در پیوند بین لایه‌ها، توزیع نامناسب حرارت و یا تنظیمات نامناسب سرعت چاپ در طی فرآیند چاپ سه‌بعدی مرتبط باشد [۲۰ و ۲۷]. با وجود حضور این حفرات، هیچ‌گونه نشانه‌ای از تخریب شدید حرارتی یا جدایش فازی در نمونه‌ها مشاهده نشد و ساختار کلی کامپوزیت‌ها، به‌ویژه نمونه‌های چاپ‌شده به روش FGF، از نظر مورفولوژیکی در محدوده قابل‌قبول قرار داشت. هرچند میزان تخلخل در نمونه‌های FGF کمتر از نمونه‌های FFF بود، اما وجود این ناپیوستگی‌ها همچنان می‌تواند بر خواص مکانیکی کامپوزیت تأثیرگذار باشد. در راستای بهینه‌سازی کیفیت نهایی کامپوزیت‌های زیستی و کاهش تخلخل‌های ناخواسته، کنترل دقیق و جامع پارامترهای فرآیند در تمامی مراحل تولید، به‌ویژه در فرآیندهای اکستروژن و چاپ سه‌بعدی، ضروری است [۱۰]. عواملی نظیر رطوبت مواد اولیه، شرایط دمایی و فشاری در اکستروژر [۲۶]، میزان رطوبت فیلامنت‌ها [۲۸] و رفتار جریان مواد در نازل چاپ [۱۰] از جمله پارامترهای کلیدی مؤثر بر ویژگی‌های ساختاری و مورفولوژیکی کامپوزیت‌ها محسوب می‌شوند. کنترل بهینه این پارامترها می‌تواند منجر به کاهش گازهای ناشی از رطوبت، بهبود پیوند بین لایه‌ها و در نهایت تولید ساختارهایی متراکم‌تر و یکنواخت‌تر شود که بهبود قابل‌توجهی در خواص مکانیکی کامپوزیت‌ها به همراه خواهد داشت.

چاپ صندلی به روش FGF

نمونه‌های یک‌بار اکستروژن شده به‌واسطه‌ی ویژگی‌های ریز ساختار مطلوب، از جمله پراکندگی یکنواخت و همگن مواد در ماتریس پلیمری، برای فرآیندهای چاپ سه‌بعدی با استفاده از روش‌های FFF و FGF انتخاب شدند. با بررسی تصاویر میکروسکوپی، مشخص گردید که نمونه‌های ساخته‌شده به روش FGF دارای ویژگی‌های مورفولوژی بهتر و متراکم‌تری نسبت به نمونه‌های ساخته‌شده به روش FFF هستند. این تفاوت‌ها نشان‌دهنده‌ی پراکنش یکنواخت‌تر فاز تقویت‌کننده و



شکل ۱۱- تصاویر از نماهای مختلف صندلی چاپ شده (الف: تصویر سمت راست صندلی در حالت ایستاده، ب: تصویر سمت چپ صندلی در حالت خوابیده، ج: تصویر سمت چپ و پشت صندلی در حالت خوابیده و د: تصویر سمت چپ صندلی در حالت ایستاده) به روش FGF با کامپوزیت زیستی PLA-WF-MCC.

به‌عنوان تکنیک مناسب‌تر برای چاپ صندلی انتخاب شد و این جسم با موفقیت چاپ شد. با توجه به نتایج این پژوهش، پیشنهادهایی برای تحقیقات آینده شامل بررسی تأثیر دقیق دما و فشار در فرآیند اکستروژن بر ویژگی‌های ساختاری کامپوزیت‌های PLA-WF-MCC و تحلیل شیمیایی و مکانیکی ترکیب‌ها با استفاده از فناوری پیشرفته است. همچنین، بهینه‌سازی فرآیند چاپ سه‌بعدی با بررسی پارامترهایی مانند سرعت چاپ، بررسی تأثیر اندازه و شکل ذرات MCC و افزودن نانو ذرات به این کامپوزیت‌ها برای بهبود خواص مکانیکی و حرارتی پیشنهاد می‌شود. این تحقیقات می‌توانند به گسترش کاربردهای صنعتی و تجاری‌سازی این کامپوزیت‌های زیستی کمک کنند.

سپاسگزاری

این پژوهش در قالب پایان‌نامه دکتری و با حمایت‌های مالی و معنوی معاونت پژوهش و فناوری دانشکده منابع طبیعی دانشکده کشاورزی و منابع طبیعی دانشگاه تهران و همچنین با حمایت ستاد توسعه فناوری‌های نانو و میکرو انجام شده است. بدین‌وسیله، نویسندگان مراتب سپاس و قدردانی صمیمانه خود را از حمایت‌های ارزشمند این نهادها ابراز می‌دارند. همچنین از پژوهشگاه پلیمر و پتروشیمی ایران، به دلیل در اختیار قرار دادن کارگاه

این یافته‌ها نشان می‌دهند که در کامپوزیت‌های زیستی، برخلاف کامپوزیت‌های با پلیمرهای نفتی، افزایش شدت فرآیند اکستروژن همیشه به بهبود پراکنش فازها منجر نمی‌شود. این تفاوت‌ها به حساسیت حرارتی بالاتر PLA نسبت داده می‌شود. انتخاب سطح بهینه اکستروژن برای جلوگیری از تخریب پلیمر و حفظ تعادل بین اختلاط و پایداری ساختاری ضروری است. در طراحی مواد زیستی، شدت فرآیند باید به‌طور دقیق تنظیم شود تا از آسیب به ساختار جلوگیری شود. نمونه‌های یک‌بار اکستروژن شده به‌واسطه‌ی ویژگی‌های ریز ساختار مطلوب، از جمله پراکنندگی یکنواخت و همگن مواد در ماتریس پلیمری، برای فرآیندهای چاپ سه‌بعدی با استفاده از روش‌های FFF و FGF انتخاب شدند. روش FGF نسبت به روش FFF از مزایای مهمی از جمله کاهش تنش‌های حرارتی و جلوگیری از تخریب مواد، کاهش هزینه‌های تولید و زمان چاپ، از توانایی چاپ با ابعاد بزرگ‌تر مانند صندلی برخوردار است. در پژوهش حاضر این روش موجب بهبود توزیع یکنواخت مواد و کاهش حفرات شد که ساختار متراکم‌تر را برای چاپ سه‌بعدی فراهم می‌کند. نمونه‌های چاپ‌شده به روش FGF دارای تعداد کمتری حفره نسبت به نمونه‌های چاپ‌شده با فیلامنت هستند. حفرات مثلثی شکل در چاپ FGF کمتر از روش چاپ FFF بود که این مسئله بهبود فرآیند چاپ و کیفیت ساختاری قطعات را نشان می‌دهد؛ بنابراین روش FGF

- microcrystalline cellulose addition on the properties of wood-PLA filaments for 3D printing. *Polymers*, 16(6), p.836.
- [11] Trache, D., Hussin, M.H., Chuin, C.T.H., Sabar, S., Fazita, M.N., Taiwo, O.F., Hassan, T.M. and Haafiz, M.M., 2016. Microcrystalline cellulose: Isolation, characterization and bio-composites application—A review. *International Journal of Biological Macromolecules*, 93, pp.789-804.
- [12] Murphy, C.A. and Collins, M.N., 2018. Microcrystalline cellulose reinforced polylactic acid biocomposite filaments for 3D printing. *Polymer Composites*, 39(4), pp.1311-1320.
- [13] Danda, C., Pandey, V., Schneider, T., Norman, R. and Maia, J.M., 2020. Enhanced dispersion and mechanical behavior of polypropylene composites compounded using extension-dominated extrusion. *International Polymer Processing*, 35(3), pp.281-301.
- [14] Gamon, G., Evon, P. and Rigal, L., 2013. Twin-screw extrusion impact on natural fibre morphology and material properties in poly (lactic acid) based biocomposites. *Industrial Crops and Products*, 46, pp.173-185.
- [15] Kaczor, D., Bajer, K., Raszowska-Kaczor, A., Domek, G., Madajski, P. and Szroeder, P., 2022. The influence of multiple extrusions on the properties of high filled polylactide/multiwall carbon nanotube composites. *Materials*, 15(24), p.8958.
- [16] Huang, Y., Löschke, S. and Proust, G., 2021. In the mix: The effect of wood composition on the 3D printability and mechanical performance of wood-plastic composites. *Composites Part C: Open Access*, 5, p.100140.
- [17] Brüster, B., Addiego, F., Hassouna, F., Ruch, D., Raquez, J.M. and Dubois, P., 2016. Thermo-mechanical degradation of plasticized poly (lactide) after multiple reprocessing to simulate recycling: Multi-scale analysis and underlying mechanisms. *Polymer Degradation and Stability*, 131, pp.132-144.
- [18] Syaifuddin, M., Suryanto, H. and Suprayitno, S., 2021. The effect of multi-extrusion process of polylactic acid on tensile strength and fracture morphology of filament product. *Mechanical Engineering*, 5(1), p.6.
- [19] Oskolkov, A.A., Bezukladnikov, I.I. and Trushnikov, D.N., 2023. Mathematical Model of the Layer-by-Layer FFF/FGF Polymer Extrusion Process for Use in the Algorithm of Numerical Implementation of Real-Time Thermal Cycle Control. *Polymers*, 15(23), p.4518.
- [20] Liu, H., Gong, K., Portela, A., Cao, Z., Dunbar, R. and Chen, Y., 2023. Granule-based material extrusion is comparable to filament-based material extrusion in terms of mechanical performances of printed PLA parts: A comprehensive investigation. *Additive Manufacturing*, 75, p.103744.
- [21] Gupta, A.K. and Taufik, M., 2021. Effect of process variables on performances measured in filament and پلاستیک، آزمایشگاه چاپ سه‌بعدی و سایر امکانات لازم برای انجام این پژوهش و از شرکت مهندسی تارتین سه‌بعدی که در زمینه چاپ نمونه‌های گرانولی و صندلی همکاری داشته است، صمیمانه تشکر و قدردانی می‌شود.
- ### منابع
- [1] Rezvani Ghomi, E., Khosravi, F., Saedi Ardahaei, A., Dai, Y., Neisiany, R.E., Foroughi, F., Wu, M., Das, O. and Ramakrishna, S., 2021. The life cycle assessment for polylactic acid (PLA) to make it a low-carbon material. *Polymers*, 13(11), p.1854.
- [2] Kaptan, A. and Kartal, F., 2024. Advancements in polylactic acid research: From material properties to sustainable applications. *European Mechanical Science*, 8(2), pp.104-114.
- [3] Cisneros-López, E.O., Pal, A.K., Rodriguez, A.U., Wu, F., Misra, M., Mielewski, D.F., Kiziltas, A. and Mohanty, A.K., 2020. Recycled poly (lactic acid)-based 3D printed sustainable biocomposites: a comparative study with injection molding. *Materials Today Sustainability*, 7, p.100027.
- [4] Zhao, X., Tekinalp, H., Meng, X., Ker, D., Benson, B., Pu, Y., Ragauskas, A.J., Wang, Y., Li, K., Webb, E. and Gardner, D.J., 2019. Poplar as biofiber reinforcement in composites for large-scale 3D printing. *ACS Applied Bio Materials*, 2(10), pp.4557-4570.
- [5] Suvanjumrat, C., Chansoda, K. and Chookaew, W., 2024. Additive manufacturing advancement through large-scale screw-extrusion 3D printing for precision parawood powder/PLA furniture production. *Cleaner Engineering and Technology*, 20, p.100753.
- [6] Guo, R., Ren, Z., Bi, H., Song, Y. and Xu, M., 2018. Effect of toughening agents on the properties of poplar wood flour/poly (lactic acid) composites fabricated with Fused Deposition Modeling. *European Polymer Journal*, 107, pp.34-45.
- [7] Zarna, C., Opedal, M.T., Echtermeyer, A.T. and Chinga-Carrasco, G., 2021. Reinforcement ability of lignocellulosic components in biocomposites and their 3D printed applications—a review. *Composites Part C: Open Access*, 6, p.100171.
- [8] Ayrilmis, N., Kariz, M., Kwon, J.H. and Kitek Kuzman, M., 2019. Effect of printing layer thickness on water absorption and mechanical properties of 3D-printed wood/PLA composite materials. *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, 102(5), pp.2195-2200.
- [9] Kuzman, M.K., Ayrilmis, N., Sernek, M. and Kariz, M., 2019. Effect of selected printing settings on viscoelastic behaviour of 3D printed polymers with and without wood. *Materials research express*, 6(10), p.105362.
- [10] Tomec, D.K., Schöflinger, M., LeBlhumer, J., Centa, U.G., Žigon, J. and Kariz, M., 2024. The Effects of

- and properties of cellulose nanocrystals-reinforced Poly (lactic acid) composite filaments for 3D printing applications. *Results in Engineering*, 17, p.100842.
- [27] Duty, C.E., Kunc, V., Compton, B., Post, B., Erdman, D., Smith, R., Lind, R., Lloyd, P. and Love, L., 2017. Structure and mechanical behavior of Big Area Additive Manufacturing (BAAM) materials. *Rapid Prototyping Journal*, 23(1), pp.181-189.
- [28] Estakhrianhaghighi, E., Mirabolghasemi, A., Zhang, Y., Lessard, L. and Akbarzadeh, A., 2020. 3D-printed wood-fiber reinforced architected cellular composites. *Advanced Engineering Materials*, 22(11), p.2000565.
- [29] Sohilpour, R., Rezadoost, A.M., Razavi Nouri, K., Grossi, K. and Ghaffarian, M., 2020. The effect of multi-walled carbon nanotubes on the tensile properties and printing quality of 3D printed acrylonitrile-butadiene-styrene nanocomposites. *Journal of Polymer Science and Technology*, 32(6), pp.497-507 (In Persian).
- [30] Krapež Tomec, D., Schöflinger, M., LeBlhumer, J., Žigon, J., Humar, M. and Kariž, M., 2024. Effect of thermal modification of wood on the rheology, mechanical properties and dimensional stability of wood composite filaments and 3D-printed parts. *Wood Material Science & Engineering*, 19(6), pp.1251-1265.
- pellet based extrusion process. *Materials Today: Proceedings*, 47, pp.5177-5184.
- [22] Tao, Y., Kong, F., Li, Z., Zhang, J., Zhao, X., Yin, Q., Xing, D. and Li, P., 2021. A review on voids of 3D printed parts by fused filament fabrication. *Journal of Materials Research and Technology*, 15, pp.4860-4879.
- [23] Mathew, A.P., Oksman, K. and Sain, M., 2005. Mechanical properties of biodegradable composites from poly lactic acid (PLA) and microcrystalline cellulose (MCC). *Journal of applied polymer science*, 97(5), pp.2014-2025.
- [24] Olonisakin, K., Li, R., Zhang, X.X., Xiao, F., Gao, J. and Yang, W., 2021. Effect of TDI-assisted hydrophobic surface modification of microcrystalline cellulose on the tensile fracture of MCC/PLA composite, and estimation of the degree of substitution by linear regression. *Langmuir*, 37(2), pp.793-801.
- [25] Rasheed, M., Jawaid, M., Parveez, B., Hussain Bhat, A. and Alamery, S., 2021. Morphology, structural, thermal, and tensile properties of bamboo microcrystalline cellulose/poly (lactic acid)/poly (butylene succinate) composites. *Polymers*, 13(3), p.465.
- [26] Ahmad, N.D. and Wildan, M.W., 2023. Preparation