

УДК 674.8

DOI: 10.37482/0536-1036-2020-2-129-145

## ИССЛЕДОВАНИЕ СВОЙСТВ ДРЕВЕСНО-ПОЛИМЕРНОГО КОМПОЗИТА НА ОСНОВЕ PLA

*И.К. Говядин, асп.; ResearcherID: [AAF-5782-2019](https://orcid.org/0000-0002-0143-1916),*

*ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-0143-1916>*

*А.Н. Чубинский, д-р техн. наук, проф.; ResearcherID: [I-9432-2016](https://orcid.org/0000-0001-7914-8056),*

*ORCID: <https://orcid.org/0000-0001-7914-8056>*

Санкт-Петербургский государственный лесотехнический университет им. С.М. Кирова, Институтский пер., д. 5, Санкт-Петербург, Россия, 194021;

e-mail: govядin812@gmail.com, a.n.chubinsky@gmail.com

Представлены результаты исследования древесно-полимерной нити для печати методом послойного наплавления. 3D-печать, используемая при изготовлении изделий со сложными геометрическими формами, может быть составной частью производства малых архитектурных форм, мебельного декора, детских игрушек. Аддитивные технологии позволяют перейти на безотходное производство, а также применять возобновляемое биологическое сырье. Использование древесно-полимерных композитов для инкрустации мебели позволяет снизить себестоимость готового изделия. В ходе эксперимента на одношнековом экструдере были изготовлены нити диаметром 1,7 мм из смеси наполнитель (древесная мука)/связующее (полилактид). Установлено, что наполнитель равномерно распределен по объему связующего в виде частиц сферической либо удлиненной формы с размерами от 0,2 до 1,2 мкм. Размер зон с повышенной концентрацией частиц наполнителя изменяется от 2,7 до 9,8 мкм. Обнаружены пустоты произвольной формы (с размерами от 9,5 до 32,5 мкм) в срезах древесно-полимерной нити, полученных перпендикулярно ее длине. Исследование срезов нити в режиме «скрещенных николей» показало мозаичный характер двулучепреломления. Размер агрегатов с интенсивным двулучепреломлением из сферических частиц изменяется от 4,5 до 55,1 мкм. Вероятно, частицы древесной муки являются зародышами для кристаллизации связующего (полилактида), что проявляется в возникновении этих зон. Изучение вязкости древесно-полимерного композита от температуры показало, что в сравнении с полилактидными (PLA) нитями существенных отличий не обнаружено. Установлены температуры стеклования (58,19 °С) и начала плавления (214,00 °С), что подтверждает схожесть нитей из древесно-полимерного композита с нитями PLA. Результаты испытаний на водопоглощение свидетельствуют, что в исследуемых образцах массовая доля воды значительно увеличивается с ростом содержания наполнителя в материале и высоты напечатанного слоя. Измерение краевого угла смачивания образцов показало, что водно-дисперсионные лаки частично смачивают поверхность древесно-полимерного композита, создавая условия адгезионного взаимодействия. По прочности при разрыве и модулю упругости при растяжении (при 100 % плотности заполнения) образцы из древесно-полимерной композиции уступают нитям из PLA, но имеют лучшие показатели по сравнению с образцами из ABS (акрилонитрил-бутадиен-стирол) пластика. Тепловизионное исследование позволило зафиксировать быстрое снижение температуры слоев модели от уровней, возникающих на выходе из сопла, до значений средней зоны модели и разделить термические зоны на три уровня, а также подтвердило схожесть с образцами из PLA-нити.

**Для цитирования:** Говядин И.К., Чубинский А.Н. Исследование свойств древесно-полимерного композита на основе PLA // Изв. вузов. Лесн. журн. 2020. № 2. С. 129–145. DOI: 10.37482/0536-1036-2020-2-129-145

*Ключевые слова:* древесно-полимерная композиция, FDM-печать, древесная мука, полилактид, древесно-полимерная нить для FDM-печати, свойства древесно-полимерной нити.

### *Введение*

Технологии 3D-печати стремительно развиваются. 3D-принтеры становятся все более доступными и применяются в различных отраслях [14, 20]. Наиболее востребованным является моделирование методом наплавки (FDM) [20], благодаря использованию различных материалов, ассортимент которых вырос.

Одна из существенных проблем синтетических полимерных материалов, используемых в 3D-печати для послойного наплавления, – высокая стойкость к физико-химическому и биологическому разложению. В последнее десятилетие проблемы, связанные с загрязнением окружающей среды и растущей осведомленностью об ограниченных ресурсах, побудили научное сообщество изучать и оптимизировать возобновляемые альтернативы традиционным пластмассам из нефти. Биопластики полностью или частично получают из возобновляемых ресурсов – они обладают уникальным преимуществом по сравнению с обычными пластмассами. При этом снижается зависимость от невозобновляемого сырья, такого как сырая нефть, и сокращаются выбросы парниковых газов [5, 8, 18, 22]. Биопластики в основном производятся из сельскохозяйственного сырья, т. е. растений, богатых углеводами (кукуруза, сахарный тростник) [8, 18]. Но такие пластики довольно дороги, и одним из возможных путей снижения их цены является использование в качестве наполнителя дешевых продуктов, например древесной муки. Преимущество древесно-полимерной продукции заключается в том, что готовые изделия получают из отходов производства. Отсутствие эмиссии вредных веществ расширяет область их применения, позволяя использовать в помещениях с повышенными санитарно-гигиеническими требованиями (лечебные учреждения, детские сады, школы). Способность к повторному формированию при FDM-печати и довольно легкое придание любой геометрической формы с последующим сохранением ее после охлаждения делают этот материал пригодным для создания сложных архитектурных форм. Получаемый материал характеризуется высокой шуруподоудерживающей способностью, прост в обработке, для которой используются тоже оборудование и инструмент, что и при обработке древесных изделий.

Для принятия решения о применении древесно-полимерного композита (ДПК) при изготовлении какой-либо продукции необходимо знать его физико-механические свойства в зависимости от соотношения пластика и наполнителя в готовом продукте.

### *Объекты и методы исследования*

Расходный материал для формирования изделий методом FDM-печати получали на шнековом экструдере собственной разработки [2]. Древесно-полимерную нить изготавливали, используя гранулы полилактида (PLA) (табл. 1) и древесную муку из древесины хвойных пород (марка 120, ГОСТ 16361–87).

Таблица 1

## Характеристика PLA [19]

Показатель	Метод испытаний	Единицы измерений	Эталонное значение
Внешний вид	Визуальный	–	Полупрозрачный
Плотность	GB/T1033–1986	г/см <sup>3</sup>	1,25±0,05
Температура плавления	GB/T19466.3–2004	°С	175...179
Температура стеклования	GB/T19466.3–2004	°С	> 55
Прочность на растяжение	GB/T1040–1992	МПа	≥ 60
Относительное удлинение при разрыве	GB/T1040–1992	%	≥ 5
Прочность на изгиб	GB/T1040–1992	МПа	≥ 90
Испытание на ударную вязкость по Изоду	GB/T1043–1992	кДж/м <sup>2</sup>	≥ 3,5

В экструдер загружали компоненты с определенным соотношением древесной муки и полимерного связующего и получали нить диаметром 1,7 мм [1]. Выходящая из экструдера нить перед процедурой намотки поступала в специальные ванны, которые обеспечивали ее постепенное и равномерное охлаждение.

Для проведения экспериментов изготавливали нити с различным соотношением полилактида и древесной муки. В качестве контрольных образцов использовали нити из PLA и ABS (акрилонитрил-бутадиен-стирол) пластика.

Морфологию нити изучали методом оптической микроскопии на аналитическом комплексе, включающем оптический микроскоп Leica DM-2500, цветную цифровую камеру DFC-420, специализированную компьютерную станцию и программное обеспечение Leica Application Suite.

Объектами исследования являлись: срезы параллельно и перпендикулярно длине исходной древесно-полимерной нити, выполненные с помощью ультрамикротомы Leica SM 1510S; нитевидные фрагменты изделия-композита. Срезы и фрагменты просвечивали в диапазоне длин волн от 200 до 1200 нм в режимах: «светлое поле» в естественном и поляризованном свете, «фазовый контраст» и «скрещенные николи».

Вязкость древесно-полимерной нити в сравнении с нитью из PLA определяли при температуре 80...200 °С согласно ГОСТ Р 57950–2017; скорость нагрева – 5 °С/мин; деформация – 7 %; частота деформации – 1 Гц.

Образцы печатали на 3D-принтере собственной разработки на основе Duet 2. При печати нитью с большим содержанием древесных волокон имело место закупоривание выходного отверстия печатающей головки, поэтому для образцов с содержанием древесной муки 20 и 30 % использовали сопла с диаметром выходного отверстия 0,2 и 0,4 мм соответственно, с содержанием муки 40 % – с диаметром 0,6 мм. Скорость печати для всех образцов составляла 50 мм/с, температура печати – 210 °С. Подготовку печатной модели осуществляли в программе Ultimaker Cura (version 4.2.1).

Отношение заполненного пространства ко всему внутреннему объему детали при формировании изделий методом FDM-печати называют плотностью заполнения. Образы, напечатанные из древесно-полимерной нити, имели раз-

ный показатель плотности заполнения. Контур модели – это стенка, отделяющая внешнее пространство от внутреннего. Так как модели для печати обычно имеют замкнутый объем, то, когда печать закончена, внутреннее пространство полностью скрыто. Модели с разной плотностью заполнения (20...100 %) представлены на рис. 1.

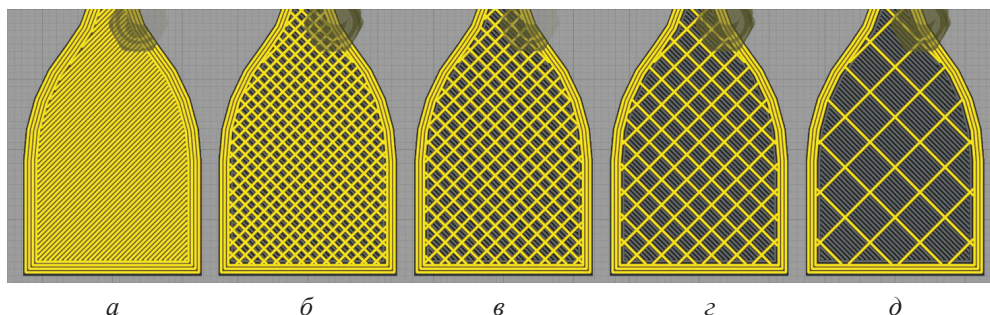


Рис. 1. Плотность заполнения образцов для механических испытаний, %: *a* – 100; *б* – 80; *в* – 60; *г* – 40; *д* – 20

Fig. 1. Filling density of the samples for mechanical tests, %: *a* – 100; *б* – 80; *в* – 60; *г* – 40; *д* – 20

Исследования с применением дифференциальной сканирующей калориметрии проводили на приборе Perkin Elmer DSK-8500. Условия испытания: предварительное охлаждение образца до температуры 0 °С; выдержка его при данной температуре в течение 1 мин; постепенный нагрев образца от 0 до 200 °С; скорость нагрева 10 °С/мин.

Для проведения физико-механических испытаний напечатаны стандартные образцы (лопатки) типа 1 по ГОСТ 11262–80 (рис. 2) в количестве 10 шт. для каждого вида ДПК с разными содержанием древесной муки и плотностью заполнения.

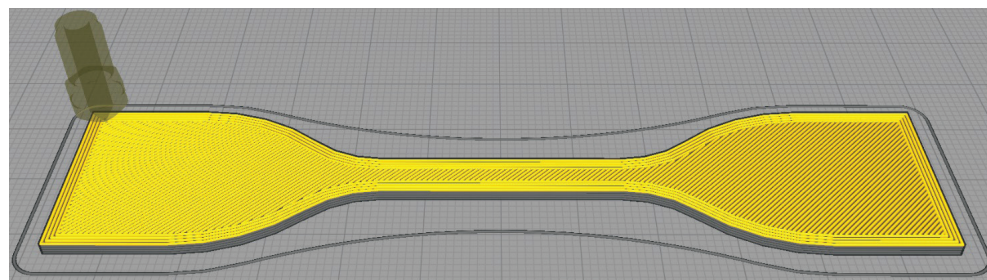


Рис. 2. Стандартные образцы (лопатки) типа 1 по ГОСТ 11262–80

Fig. 2. Standard samples (blades) of type 1 defined in the state standard GOST 11262–80

Прочность при разрыве определяли по ГОСТ 11262–80 «Пластмассы. Метод испытания на растяжение», модуль упругости при растяжении – по ГОСТ 9550–81 «Пластмассы. Метод определения модуля упругости при растяжении, сжатии и изгибе». Испытания на прочность проводили на универсальной испытательной машине RTM-1T (фирма «ORIENTEC Co», Япония) при температуре 25 °С, относительной влажности окружающей среды 24 %, скорости перемещения подвижного захвата разрывной машины 50 мм/мин, на растяжение – при скорости 1 мм/мин.

Для определения водопоглощения (адсорбции воды), а также массы воды, поглощенной образцом при погружении в воду, использовали ГОСТ 4650–2014 (ISO 62:2008) «Пластмассы. Методы определения водопоглощения».

Испытуемые образцы погружали в дистиллированную воду при температуре  $(23 \pm 2)$  °С в течение установленного периода времени. Массу воды, поглощенную каждым испытуемым образцом, вычисляли по разности между массой образца до и после испытания, выраженной в процентах по отношению к начальной массе. При этом использовали: весы лабораторные, производящие взвешивание в миллиграммах с точностью до первого десятичного знака; сушильный шкаф с принудительной циркуляцией воздуха; контейнеры, содержащие дистиллированную воду, оснащенные средствами нагревания, которые обеспечивали поддержание заданной температуры; эксикатор.

Для устранения факторов, способных повлиять на показатели поглощения воды, поверхности образцов перед испытаниями очищали с помощью специального средства, не изменяющего их свойства, затем образцы тщательно просушивали при температуре  $(50,0 \pm 2,0)$  °С в течение 24 ч, охлаждали при температуре  $(23 \pm 2)$  °С и взвешивали, фиксируя результат взвешивания в миллиграммах с точностью до первого десятичного знака.

Эксперимент проводили на 3 образцах в форме диска диаметром  $(50 \pm 1)$  мм толщиной  $(3,0 \pm 0,2)$  мм. Формирование образцов осуществляли на 3D-принтере методом FDM-печати. Каждую партию образцов печатали с разными процентным соотношением древесной муки/полилактида и высотой слоя. Высота слоя – настраиваемый параметр, который определяет, на какую высоту по вертикали (по оси Z) смещается печатающая головка при переходе к следующему слою.

Каждый набор из 3 образцов помещали в отдельный контейнер и полностью погружали в дистиллированную воду. Образцы укладывали в таком порядке, чтобы исключить соприкосновение друг с другом и стенками контейнера. После выдержки в воде в течение  $(24 \pm 1)$  ч их извлекали, удаляли воду с них фильтровальной бумагой и в течение не более 1 мин после извлечения взвешивали с точностью  $\pm 0,1$  мг.

Также вводили поправку на потерю растворимого в воде вещества в результате выдержки в воде. С этой целью после погружения повторно кондиционировали испытуемые образцы до постоянной массы таким же образом, как в первоначальный период сушки, и сравнивали разность масс, которую учитывали как потерю растворимого в воде вещества.

Для каждого испытуемого образца рассчитывали массовую долю воды, поглощенной им:

$$C = \frac{m_2 - m_3}{m_1} 100 \%,$$

где  $m_1$ ,  $m_2$ ,  $m_3$  – масса образца после первоначального просушивания и перед погружением в воду, после выдержки в воде, после выдержки и окончательного просушивания соответственно, мг.

За результат испытаний принимали среднеарифметическое значение 3 результатов, полученных при одинаковой продолжительности выдержки в воде.

Для повышения влаго- и атмосферостойкости изделия из ДПК покрывают лакокрасочными материалами, долговечность защитного действия которых зависит от сил адгезионного взаимодействия, оцениваемых краевым углом смачивания. Способность ДПК смачиваться изучали на приборе фирмы «Krüss» с программным обеспечением DSA (Drop Shape Analyzer). Краевой угол смачивания определяли методом лежащей капли. Образцы перед исследованием промывали дистиллированной водой и сушили в течение суток. Каплю водно-дисперсионного акрилового лака помещали на поверхность образца с помощью шприца вручную. Диаметр капли – около 5 мм. Температура в помещении 24 °С.

Для наблюдения за распределением температуры при печати на FDM-принтере использовали тепловизор Testo 875-2i.

### *Результаты исследования и их обсуждение*

В ходе исследования морфологии нити методом оптической микроскопии установлено, что в исходном композите (древесно-полимерная нить диаметром 1,7 мм) наполнитель присутствует в виде частиц сферической либо удлинённой формы с размерами от 0,2 до 1,2 мкм. Размер зон с повышенной концентрацией частиц наполнителя изменяется в диапазоне 2,7...9,8 мкм. Оптическая плотность частиц наполнителя ниже, чем матрицы (полилактида). Распределение частиц наполнителя изотропно, преимущественной ориентации его частиц не обнаружено как в срезах, полученных параллельно длине древесно-полимерной нити (рис. 3, *а*), так и в срезах, полученных перпендикулярно длине нити (рис. 3, *б*).

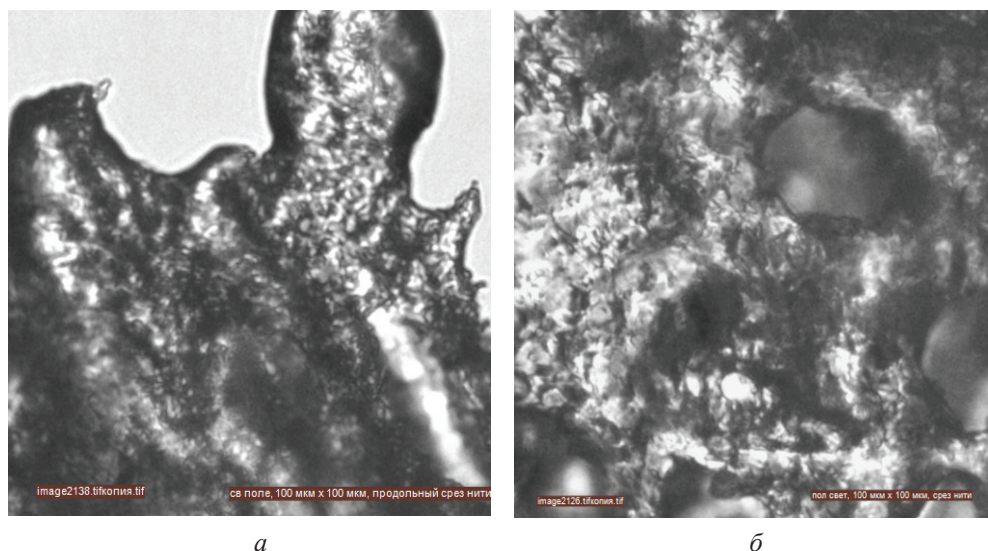


Рис. 3. Микрофотографии срезов древесно-полимерной нити, полученных параллельно (*а* – светлое поле в естественном свете) и перпендикулярно (*б* – светлое поле в поляризованном свете) ее длине (размер кадров: 100×100 мкм)

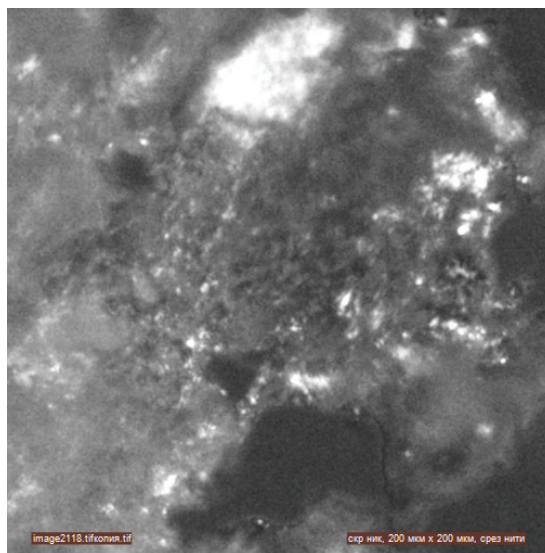
Fig. 3. Microphotographs of the wood-polymer filament sections obtained parallel to the filament length (*a* – bright field in natural light) and perpendicular to the filament length (*b* – bright field in polarized light). Frame size: 100×100 μm

Обращает на себя внимание наличие пустот в срезах древесно-полимерной нити, полученных перпендикулярно ее длине (рис. 3, б). Форма пустот произвольна, их размер изменяется от 9,5 до 32,5 мкм.

Исследование срезов нити в режиме скрещенных николей показало мозаичный характер двулучепреломления. Размер агрегатов с интенсивным двулучепреломлением из сферических частиц изменяется в диапазоне от 4,5 до 55,1 мкм (рис. 4).

Рис. 4. Микрофотография среза древесно-полимерной нити, полученного перпендикулярно ее длине (режим – скрещенные николи; размер кадра – 200×200 мкм)

Fig. 4. A microphotograph of a wood-polymer filament section obtained perpendicular to the filament length. Mode: crossed Nicols. Frame size: 200×200 μm



Вероятно, частицы древесной муки являются зародышами для кристаллизации связующего – полилактида, что проявляется в возникновении зон двулучепреломления при исследовании срезов в режиме скрещенных николей.

На рис. 5 представлены микрофотографии фибрилл. Фибриллы переменной толщины (125...324 мкм) содержат цепочки частиц наполнителя, ориентированные вдоль направления экструзии (см. рис. 5, а). Размер зон двулучепреломления – от 1,2 до 29,5 мкм (рис. 5, б, в).

В результате исследования морфологии древесно-полимерной нити на основе древесной муки и полилактида установлено следующее:

частицы наполнителя размером 0,2...1,2 мкм равномерно распределены по объему связующего;

преимущественной ориентации частиц наполнителя в исходной древесно-полимерной нити диаметром 1,7 мм не обнаружено;

древесно-полимерная нить содержит пустоты произвольной формы диаметром от 9,5 до 32,5 мкм;

частицы древесной муки являются зародышами для кристаллизации полилактида;

головка экструдера ориентирует частицы наполнителя вдоль направления экструзии с образованием цепочечных структур.

Результаты исследования зависимости вязкости от температуры ДПК с применением дифференциальной сканирующей калориметрии (рис. 6) позволяют обосновать параметры режимов обработки нити при печати изделий из такого композита.

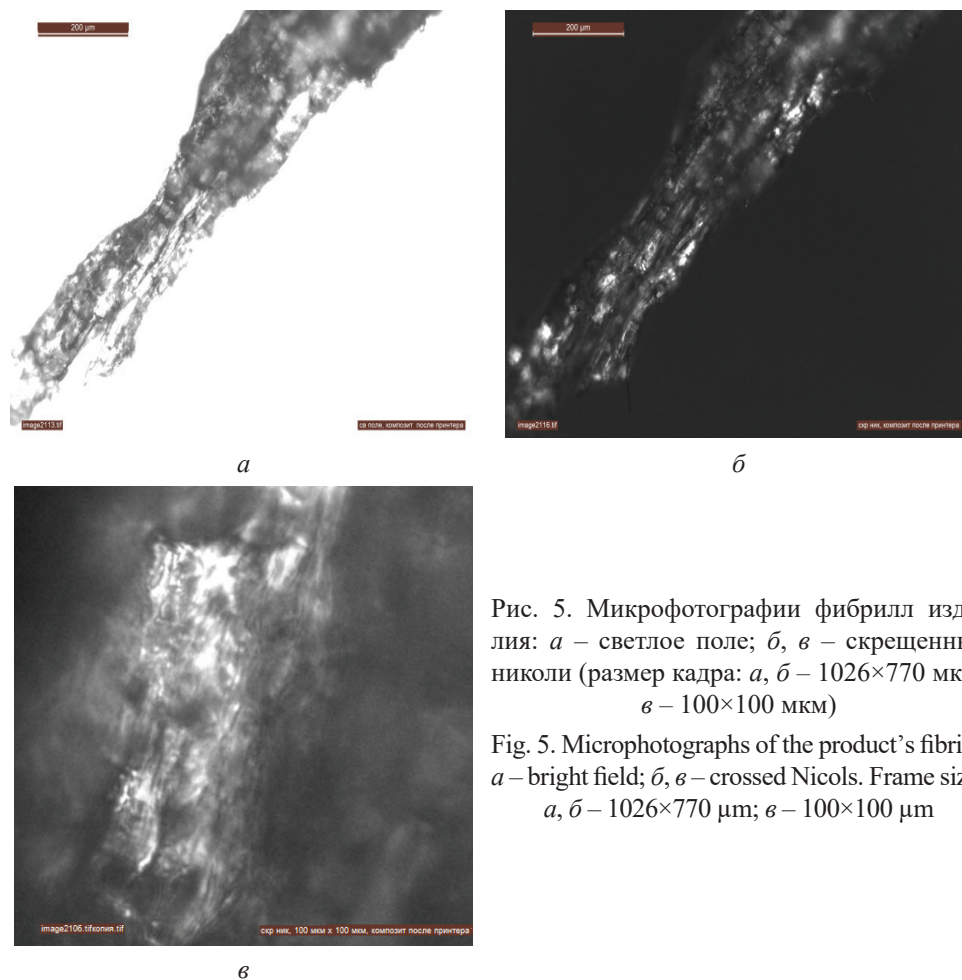


Рис. 5. Микрофотографии фибрилл изделия: *a* – светлое поле; *б, в* – скрещенные николи (размер кадра: *a, б* – 1026×770 мкм; *в* – 100×100 мкм)

Fig. 5. Microphotographs of the product's fibrils: *a* – bright field; *б, в* – crossed Nicols. Frame size: *a, б* – 1026×770 μm; *в* – 100×100 μm

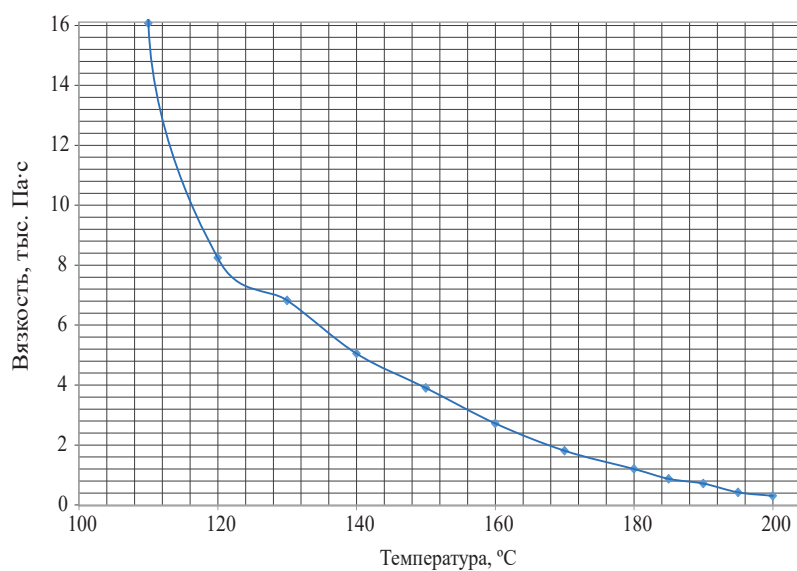


Рис. 6. Зависимость вязкости от температуры ДПК

Fig. 6. The dependence of viscosity on temperature of the wood-polymer composite



Используя данные, полученные в ходе экспериментов, установлены температура стеклования образца (58,19 °С) и температура начала плавления (214,00 °С), что является обоснованием входных параметров для FDM-печати с помощью ДПК (рис. 7).

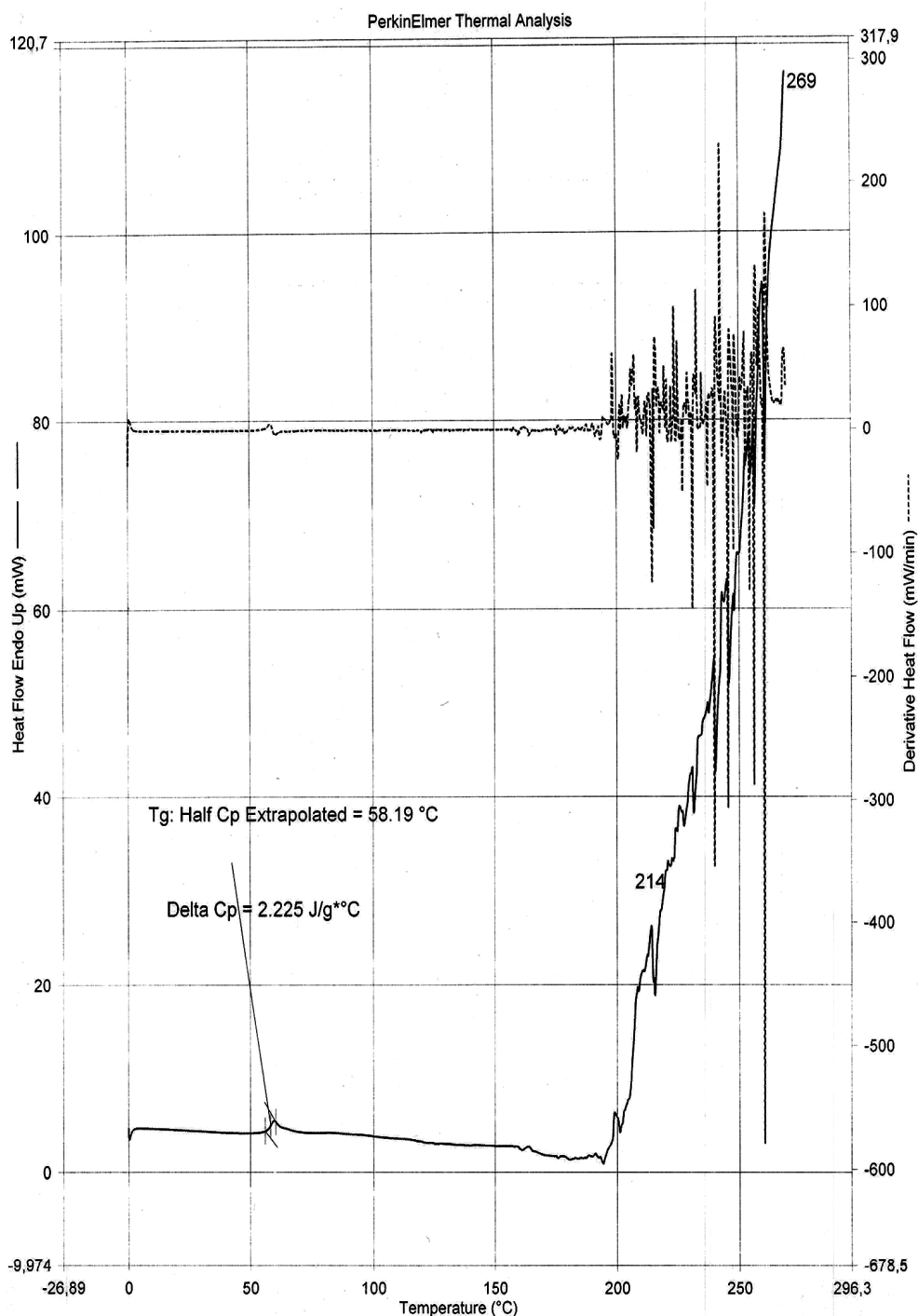


Рис. 7. Зависимость тепловых потоков от температуры при FDM-печати

Fig. 7. The dependence of heat fluxes on temperature when FDM-printing

В табл. 2 приведены результаты испытаний на водопоглощение, а также определения массовой доли воды, поглощенной образцами из ДПК при погружении их в дистиллированную воду.

Таблица 2

Результаты испытаний образцов на водопоглощение

Содержание древесной муки, %	Высота слоя, мм	$m_1$	$m_2$	$m_3$	$m_2 - m_1$	C, %
		мг				
0	0,1	6351	6580	6350	229	3,6214
	0,2	6055	6291	6057	236	3,8645
	0,3	5753	6023	5753	270	4,6932
20	0,1	6007	6350	6000	343	5,8265
	0,2	5704	6082	5709	378	6,5392
	0,3	5400	5817	5396	417	7,7962
30	0,1	5751	6256	5750	505	8,7984
	0,2	5482	6042	5484	560	10,1787
	0,3	5150	5774	5157	624	11,9805
40	0,1	5101	6056	5098	955	18,7806
	0,2	4802	5785	4803	983	20,4498
	0,3	4500	5659	4500	1159	25,7555

Данные рис. 8 отражают зависимость массовой доли воды, поглощенной образцом из ДПК с содержанием 30 % древесной муки из древесины хвойных пород, от высоты слоя. Поглощение воды в образцах значительно возросло при увеличении высоты печатного слоя.

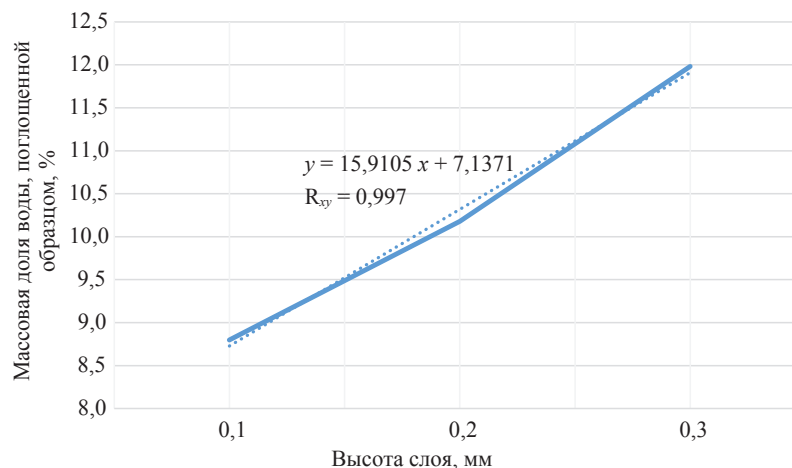


Рис. 8. Влияние высоты печатного слоя на массовую долю воды, поглощенной образцом из ДПК с содержанием 30 % древесной муки из древесины хвойных пород

Fig. 8. The effect of the printing layer height on the mass fraction of water absorbed by a wood-polymer composite sample containing 30 % (WPC-30) of coniferous wood flour

Полученные результаты можно объяснить пустотами между слоями в напечатанных образцах, что отмечено в исследовании [12] на основе данных сканирующей электронной микроскопии (микроскоп Tescan Vega 3 LMH) (рис. 9).

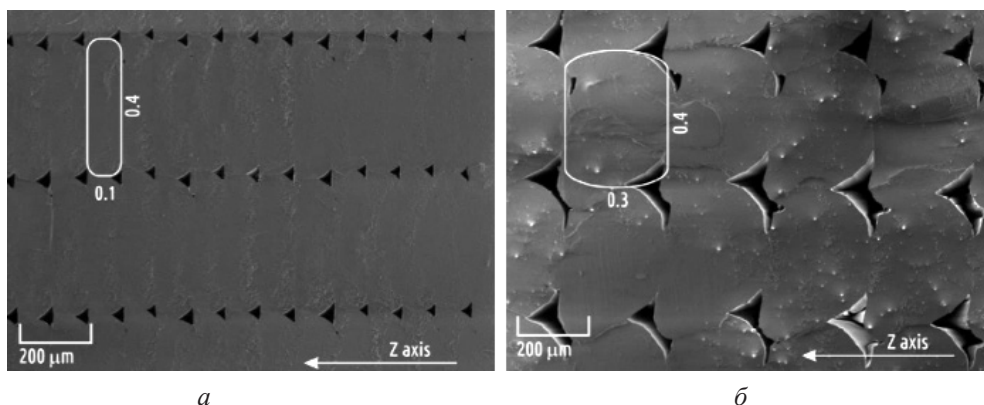


Рис. 9. Изображения поперечных сечений образцов из ДПК с различной высотой печатного слоя, мм: *a* – 0,1; *б* – 0,3 [7]

Fig. 9. Images of the cross sections of the WPC samples with various height of the printing layer, mm: *a* – 0.1; *б* – 0.3 [7]

Это является следствием того, что общая площадь пустот в образце возросла с повышением высоты слоя (аналогично исследованию [6]) и тем самым вызвала увеличение массы воды, поглощенной образцом.

Кроме того, нить содержит сухую древесную муку, которая представляет собой природный гидрофильный полимер, имеющий большое количество гидроксильных групп в молекулярных цепях. При контакте с водой сухая древесная мука, поглощая воду, разбухает, ее влагосодержание увеличивается, приближаясь к пределу насыщения клеточных стенок, что видно на образцах, содержащих 40 % древесной муки (табл. 2). Следует заметить, что полимер обволакивает древесные частицы и уменьшает их гигроскопичность по сравнению с обычной древесиной.

На рис. 10 представлены результаты измерения краевого угла смачивания ( $\theta$ ) испытуемых образцов при разном содержании древесной муки.

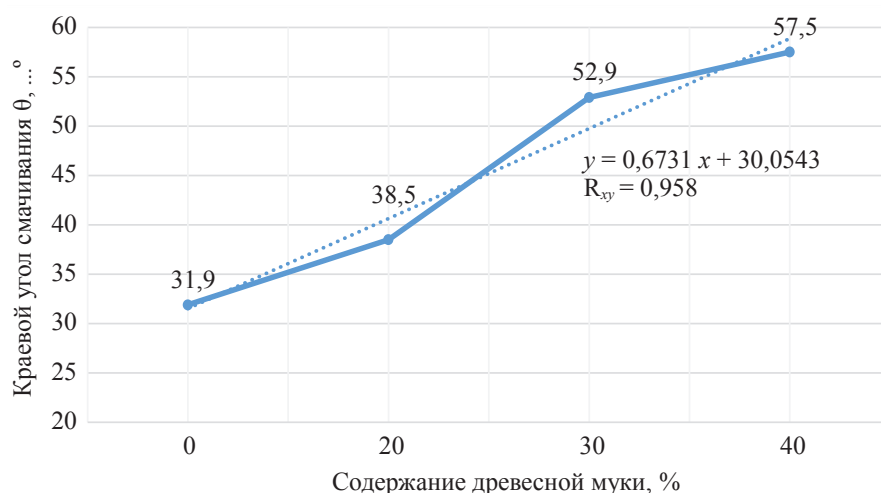


Рис. 10. Зависимость краевого угла смачивания от содержания древесной муки в образце ДПК

Fig. 10. The dependence of the contact angle on the wood flour content

Из рис. 10 видно, что водно-дисперсионные лаки частично смачивают поверхность ДПК, создавая условия адгезионного взаимодействия [3].

Результаты измерения имеют достаточно высокое среднее квадратичное отклонение из-за неоднородности поверхности и ширины наносимого слоя ДПК, которые вместе образуют поверхности с достаточно высокой шероховатостью.

В табл. 3 приведены результаты определения прочности при разрыве и модуля упругости при растяжении образцов из различных материалов.

Таблица 3

**Результаты механических испытаний образцов**

Материал	Содержание древесной муки, %	Плотность заполнения, %	Масса образца, г	Прочность при разрыве, МПа	Модуль упругости при растяжении, МПа
ДПК	20	100	4,40	40,1	5352
		80	4,06	38,8	4875
		60	3,82	34,2	4486
		40	3,39	30,0	4284
		20	3,00	24,1	4014
ДПК	30	100	4,31	36,7	5106
		80	3,98	33,2	4828
		60	3,66	29,0	4391
		40	3,28	28,6	4273
		20	2,99	22,7	3684
ДПК	40	100	4,29	33,1	4621
		80	3,97	30,5	4124
		60	3,48	25,9	3575
		40	3,25	24,3	3412
		20	2,99	20,1	3386
PLA	0	100	4,45	56,8	5560
		80	4,17	42,4	5372
		60	3,91	36,5	4920
		40	3,60	31,2	4519
		20	3,30	27,4	4195
ABS	0	100	4,20	36,4	3467
		80	3,91	32,6	3152
		60	3,54	26,8	2812
		40	3,24	22,7	2598
		20	2,95	17,5	2274

На прочность изделий при FDM-печати влияет множество различных факторов, поэтому полученные данные следует использовать только в качестве вспомогательных для сравнительной оценки материала с различным содержанием древесной муки.

Анализ результатов табл. 3 показал, что при 100 %-й плотности заполнения образцы из ДПК с содержанием 30 % древесной муки из древесины хвойных пород (ДПК-30) уступают по прочности образцам из PLA, но превосходят образцы из ABS. Со снижением плотности заполнения прочность ДПК уменьшается в равной степени по сравнению с образцами из PLA и ABS. Сравнивая с механическими характеристиками напечатанных изделий на основе различных

полимерных материалов [4, 7, 9–11, 13, 15–17], можно сделать вывод, что ДПК имеет аналогичные показатели.

На рис. 11 представлена зависимость механических показателей образцов ДПК-30 от плотности заполнения, которая с высокой точностью описывается уравнением прямой линии.

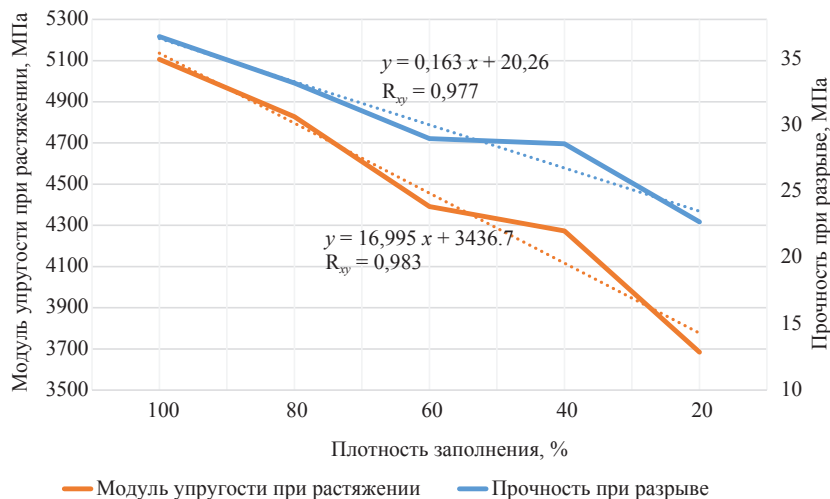


Рис. 11. Зависимость механических показателей образцов ДПК-30 от плотности заполнения

Fig. 11. The dependence of the mechanical properties of the WPC-30 samples on the filling density

Результаты тепловизионного исследования в инфракрасном диапазоне показали распределение температуры во время FDM-печати на 3D-принтере собственной конструкции. На рис. 12 изображена середина процесса печати (около 47%), когда образец еще относительно невысок. На этом этапе, как видно из рис. 12, 13, температура образца существенно изменяется от верхнего слоя к нижнему.

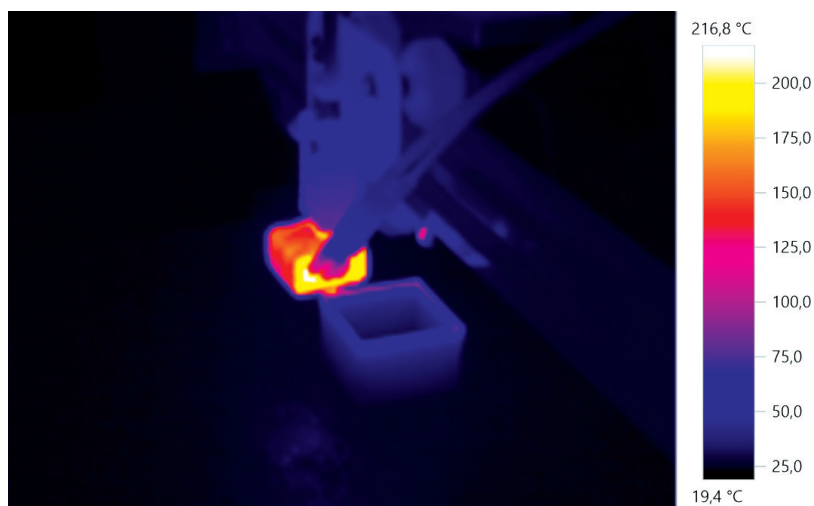


Рис. 12. Изображение процесса печати образца в инфракрасном диапазоне волн

Fig. 12. Image of the sample printing procedure in the infrared band

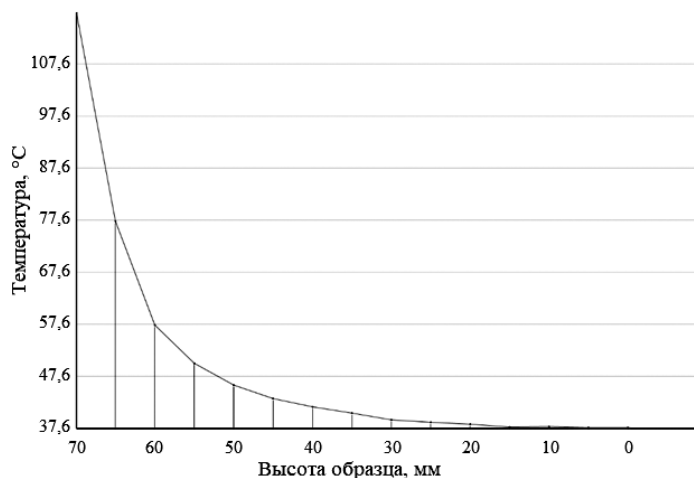


Рис. 13. Изменение температуры слоев образца при печати (от верхнего слоя к нижнему)

Fig. 13. Change temperature of the sample layers while FDM-printing (from the top to the bottom layer)

Тепловая характеристика процесса печати с использованием ДПК показала быстрое снижение температуры нити от уровней, возникающих на выходе из сопла, до значений средней зоны модели. Несмотря на быстрое охлаждение ДПК, наиболее качественное формирование слоев наблюдалось при температуре 210 °C.

Можно выделить 3 термические зоны на образце: первая – горячая зона (температура 69,1...104,7 °C) – зафиксирована рядом с соплом; вторая – зона, где температура существенно не отличается от температуры ближайших слоев (33,6...53,5 °C), – представляет собой плавный переход между горячей и холодной зонами; третья – фиксируется в нижних слоях модели и зависит от температуры непосредственного окружения (рабочей платформы).

Полученные результаты относительно схожи с данными [21] для образцов из PLA-нити.

#### *Выводы*

1. Обоснованы состав древесно-полимерной композиции и плотность заполнения, при которых прочность образца из ДПК выше, чем у ABS пластика. Содержание древесной муки в композите не должно превышать 30 %.

2. Плотность заполнения необходимо обосновывать, исходя из требуемых эксплуатационных свойств продукции.

3. Установлено, что ДПК пригоден для печати, а температура печати должна быть не ниже 210 °C. При более высокой температуре может произойти термическое разложение древесных частиц, что является предметом дальнейших исследований.

4. В целях повышения атмосферостойкости и улучшения декоративных свойств изделий из ДПК рекомендуется создавать на их поверхности защитно-декоративные покрытия.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ / REFERENCES

1. Говядин И.К. Производственная линия изготовления древесно-полимерной нити для 3D-печати методом послойного наплавления полимера // Актуальные вопросы в лесном хозяйстве: материалы 3-й междунар. науч.-практ. конф. молодых ученых, 06–08 ноября 2019 г. СПб.: Полиграф Экспресс, 2019. 254 с. [Govyadin I.K. Production Line for the Manufacture of Wood-Polymer Filament for 3D Printing by the FDM-Method. *The Current Issues in Forestry: Conference of Young Scientists, Saint Petersburg, November 6–8, 2019*. Saint Petersburg, Poligraf Ekspress Publ. 2019. 254 p.].
2. Патент на полезную модель № 190068 Российская Федерация, МПК В29В 7/92. Портативный шнековый экструдер для производства древесно-полимерной нити: № 2019103226: заявл. 05.02.19: опубл. 17.06.19. / Говядин И.К. [Govyadin I.K. *Portable Screw Extruder for the Production of Wood-Polymer Filament*. Patent RF, no. RU 190068 U1, 2019].
3. Чубинский А.Н. Формирование клеевых соединений древесины. СПб.: СПбГУ, 1992. 164 с. [Chubinsky A.N. *The Formation of Adhesive Joints of Wood*. Saint Petersburg, SPbGU Publ., 1992. 164 p.].
4. Afrose M.F. *Mechanical and Viscoelastic Properties of Polylactic Acid (PLA) Materials Processed Through Fused Deposition Modelling (FDM)*. B.Sc. (Hons) in Mechanical Engineering. Hawthorn, Australia, Swinburne University of Technology, 2016. 81 p.
5. Aravind Raj S., Muthukumar E., Jayakrishna K. A Case Study of 3D Printed PLA and Its Mechanical Properties. *Materials Today: Proceedings*, 2018, vol. 5, iss. 5, part 2, pp. 11219–11226. DOI: [10.1016/j.matpr.2018.01.146](https://doi.org/10.1016/j.matpr.2018.01.146)
6. Ayrlimis N., Kariz M., Kwon J.H., Kuzman M.K. 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*, 2019, vol. 102, pp. 2195–2200. DOI: [10.1007/s00170-019-03299-9](https://doi.org/10.1007/s00170-019-03299-9)
7. Caminero M.A., Chacón J.M., García-Plaza E., Núñez P.J., Reverte J.M., Becar J.P. Additive Manufacturing of PLA-Based Composites Using Fused Filament Fabrication: Effect of Graphene Nanoplatelet Reinforcement on Mechanical Properties, Dimensional Accuracy and Texture. *Polymers*, 2019, vol. 11, iss. 5, art. 799. DOI: [10.3390/polym11050799](https://doi.org/10.3390/polym11050799)
8. Cicala G., Giordano D., Tosto C., Filippone G., Recca A., Blanco I. Polylactide (PLA) Filaments a Biobased Solution for Additive Manufacturing: Correlating Rheology and Thermomechanical Properties with Printing Quality. *Materials*, 2018, vol. 11(7), art. 1191. DOI: [10.3390/ma11071191](https://doi.org/10.3390/ma11071191)
9. Domínguez-Rodríguez G., Ku-Herrera J.J., Hernández-Pérez A. An Assessment of the Effect of Printing Orientation, Density, and Filler Pattern on the Compressive Performance of 3D Printed ABS Structures by Fuse Deposition. *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, 2018, vol. 95, pp. 1685–1695. DOI: [10.1007/s00170-017-1314-x](https://doi.org/10.1007/s00170-017-1314-x)
10. Farbman D., McCoy C. Materials Testing of 3D Printed ABS and PLA Samples to Guide Mechanical Design. *Proceedings of the 11th International Manufacturing Science and Engineering Conference, Blacksburg, June 27 – July 1, 2016*. Blacksburg, VA, USA, 2016, paper no. MSEC2016-8668, V002T01A015. DOI: [10.1115/MSEC2016-8668](https://doi.org/10.1115/MSEC2016-8668)
11. Jaya Christiyan K.G., Chandrasekhar U., Venkateswarlu K. A Study on the Influence of Process Parameters on the Mechanical Properties of 3D Printed ABS Composite. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, 2016, vol. 114, art. 012109. DOI: [10.1088/1757-899X/114/1/012109](https://doi.org/10.1088/1757-899X/114/1/012109)
12. Kuznetsov V.E., Solonin A.N., Urzhumtsev O.D., Schilling R., Tavitov A.G. Strength of PLA Components Fabricated with Fused Deposition Technology Using a Desktop 3D Printer as a Function of Geometrical Parameters of the Process. *Polimers*, 2018, vol. 10(3), art. 313. DOI: [10.3390/polym10030313](https://doi.org/10.3390/polym10030313)

13. Messimer S.L., Pereira T.R., Patterson A.E., Lubna M., Drozda F.O. Full-Density Fused Deposition Modeling Dimensional Error as a Function of Raster Angle and Build Orientation: Large Dataset for Eleven Materials. *Journal of Manufacturing and Materials Processing*, 2019, vol. 3(1), art. 6. DOI: [10.3390/jmmp3010006](https://doi.org/10.3390/jmmp3010006)
14. Ngo T.D., Kashani A., Imbalzano G., Nguyen K.T.Q., Hui D. Additive Manufacturing (3D Printing): A Review of Materials, Methods, Applications and Challenges. *Composites Part B: Engineering*, 2018, vol. 143, pp. 172–196. DOI: [10.1016/j.compositesb.2018.02.012](https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2018.02.012)
15. Patterson A.E., Pereira T.R., Allison J.T., Messimer S.L. IZOD Impact Properties of Full-Density Fused Deposition Modeling Polymer Materials with Respect to Raster Angle and Print Orientation. *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part C: Journal of Mechanical Engineering Science*. 2019. DOI: [10.1177/0954406219840385](https://doi.org/10.1177/0954406219840385)
16. Samykano M., Selvamani S.K., Kadirgama K., Ngui W.K., Kanagaraj G., Sudhakar K. Mechanical Property of FDM Printed ABS: Influence of Printing Parameters. *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, 2019, vol. 102, pp. 2779–2796. DOI: [10.1007/s00170-019-03313-0](https://doi.org/10.1007/s00170-019-03313-0)
17. Seol K.-S., Zhao P., Shin B.-C., Zhang S.-U. Infill Print Parameters for Mechanical Properties of 3D Printed PLA Parts. *The Korean Society of Manufacturing Process Engineers*, 2018, vol. 17, no. 4, pp. 9–16. DOI: [10.14775/ksmpe.2018.17.4.009](https://doi.org/10.14775/ksmpe.2018.17.4.009)
18. Song J., Kay M., Coles R. Bioplastics. Ch. 11. *Food and Beverage Packaging Technology*. Ed. by R. Coles, M. Kirwan. Chichester, UK, Blackwell Publishing Ltd., 2011, pp. 295–319. DOI: [10.1002/9781444392180.ch11](https://doi.org/10.1002/9781444392180.ch11)
19. *Technical Data of the CADIT Biodegradable PLA Plastic Pellets KD-195*. China, Shenzhen Cadit Plastic Material Co. 2018. Available at: [https://www.alibaba.com/product-detail/Biodegradable-PLA-plastic-pellets-specifically-designed\\_60772914070.html](https://www.alibaba.com/product-detail/Biodegradable-PLA-plastic-pellets-specifically-designed_60772914070.html) (accessed 29.11.19).
20. Van Zeijderveld J. *The State of 3D Printing 2018: Available for Free Now!* Available at: <https://www.sculpteo.com/blog/2018/05/30/the-state-of-3d-printing-2018-available-for-free-now/> (accessed 30.05.18).
21. Zgryza Ł., Raczyńska A., Paśnikowska-Łukaszuk M. Thermovisual Measurements of 3D Printing of ABS and PLA Filaments. *Advances in Science and Technology Research Journal*, 2018, vol. 12, iss. 3, pp. 266–271. DOI: [10.12913/22998624/94325](https://doi.org/10.12913/22998624/94325)
22. Zhang Q., Pardo M., Rudich Y., Kaplan-Ashiri I., Wong J.P.S., Davis A.Y., Black M.S., Weber R.J. Chemical Composition and Toxicity of Particles Emitted from a Consumer-Level 3D Printer Using Various Materials. *Environmental Science & Technology*, 2019, vol. 53, iss. 20, pp. 12054–12061. DOI: [10.1021/acs.est.9b04168](https://doi.org/10.1021/acs.est.9b04168)

## THE STUDY OF PLA-BASED WOOD-POLYMER COMPOSITE PROPERTIES

**I.K. Govyadin**, Postgraduate Student; ResearcherID: [AAF-5782-2019](https://orcid.org/0000-0002-0143-1916),

ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-0143-1916>

**A.N. Chubinsky**, Doctor of Engineering, Prof.; ResearcherID: [I-9432-2016](https://orcid.org/0000-0001-7914-8056),

ORCID: <https://orcid.org/0000-0001-7914-8056>

Saint Petersburg State Forest Technical University, Institutskiy per., 5, Saint Petersburg, 194021, Russian Federation; e-mail: govyadin812@gmail.com, a.n.chubinsky@gmail.com

The paper presents the study of wood-polymer filament for fused filament fabrication (FDM) printing. 3D printing is used in the manufacture of products of a complex shape, which means it can be an integral part of the production of hardscape, furniture decor, and children's toys. Additive manufacturing allow to switch over to zero waste production, as well as to use renewable biological raw materials. The use of wood-polymer composites in manufacture and inlay of furniture provides an opportunity to reduce the costs of the finished product.



Filaments (1.7 mm diameter) were made of a filler/binder (wood flour/polylactide) mixture on a single screw extruder. As a result of studying the filament morphology, it was found that the filler is evenly distributed over the volume of the binder in the form of particles of a spherical or elongated shape with sizes from 0.2 to 1.2  $\mu\text{m}$ . The size of the zones with an enhanced concentration of the filler particles vary between 2.7 and 9.8  $\mu\text{m}$ . Voids were found in the wood-polymer filament sections obtained perpendicular to the filament's length; the void shape is arbitrary; the void size ranges from 9.5 to 32.5  $\mu\text{m}$ . The study of the filament sections in the crossed Nicols mode showed a mosaic pattern of birefringence. The size of aggregates of spherical particles with intense birefringence varies in the range from 4.5 to 55.1  $\mu\text{m}$ . Probably, the particles of wood flour are the nucleation centre of crystallization of the binder (polylactide), which is manifested in the formation of the birefringence zones. The study of the temperature dependence of viscosity of the wood-polymer composite showed no significant differences WPC filaments in comparison with PLA filaments. The glass transition temperature was set to 58.19  $^{\circ}\text{C}$  and the melting point temperature was 214.00  $^{\circ}\text{C}$ , which confirms the similarity with PLA filaments. The results of water absorption tests showed that the water mass fraction in the samples increases significantly with the growth of the filler content in the material and the thickness of the printed layer. The results of measuring the contact angle of the test samples showed that water-dispersion varnishes partially wet the surface of the wood-polymer composite, creating the conditions for adhesive interaction. Determination of tensile strength and the tensile modulus of elasticity showed that at 100 % filling density the samples made of wood-polymer composition are inferior to the samples made of PLA, however, they exceed in comparison with the samples made of acrylonitrile butadiene styrene (ABS) plastic. The results of a thermal imaging study made it possible to detect a rapid decrease in the temperature of the model layers from the levels arising at the exit of the nozzle to the values of the model middle zone and to divide the thermal zones onto three levels and acknowledged the similarity with the samples made of PLA filaments.

**For citation:** Govyadin I.K., Chubinsky A.N. The Study of PLA-Based Wood-Polymer Composite Properties. *Lesnoy Zhurnal* [Russian Forestry Journal], 2020, no. 2, pp. 129–145. DOI: 10.37482/0536-1036-2020-2-129-145

**Keywords:** wood-polymer composition, FDM-printing, wood flour, polylactide, wood-polymer filament for FDM-printing, wood-polymer filament properties.

Поступила 29.09.19 / Received September 29, 2019

---

---