



دانشگاه گیلان، دانشکده علوم و فنون

نشریه پژوهش‌های علوم و فناوری چوب و جنگل

جلد بیست و هفتم، شماره سوم، ۱۳۹۹

۹۳-۱۰۸

<http://jwfst.gau.ac.ir>

DOI: 10.22069/jwfst.2020.17421.1842

## ساخت و ارزیابی ویژگی‌های فیزیکی-مکانیکی نانوکامپوزیت کاغذ سلولزی-مغناطیسی/رزین اپوکسی

آسیه گل‌دوست جویباری<sup>۱</sup>، \* مهدی مشکور<sup>۲</sup>، تقی طبرسا<sup>۳</sup> و حسین یوسفی<sup>۲</sup>

<sup>۱</sup> دانشجوی کارشناسی ارشد رشته فرآورده‌های چندسازه چوب، دانشگاه علوم کشاورزی و منابع طبیعی گرگان، گرگان، ایران،

<sup>۲</sup> دانشیار گروه تکنولوژی و مهندسی چوب، دانشگاه علوم کشاورزی و منابع طبیعی گرگان، گرگان، ایران،

<sup>۳</sup> استاد گروه تکنولوژی و مهندسی چوب، دانشگاه علوم کشاورزی و منابع طبیعی گرگان، گرگان، ایران

تاریخ دریافت: ۱۳۹۸/۱۱/۱۴؛ تاریخ پذیرش: ۱۳۹۹/۰۳/۱۰

### چکیده

**سابقه و هدف:** علی‌رغم پتانسیل‌های کاربردی بالای الیاف و کاغذهای سلولزی سوپرپارامغناطیس، آب‌دوستی سلولز و عدم پایداری ابعادی ناشی از آن و نیز افت قابل‌توجه استحکام کششی در نتیجه حضور نانوذرات مغناطیسی در سطح الیاف، کاربرد این دسته از مواد عمل‌گرا محدود شده است. این مطالعه با هدف بررسی امکان آغشته‌سازی کاغذهای سلولزی-سوپرپارامغناطیس با رزین اپوکسی و بهبود رفتارهای فیزیکی-مکانیکی با تبدیل آن‌ها به نانوکامپوزیت انجام شد.

**مواد و روش‌ها:** در این مطالعه، از فرایند سنتز درجای نانوذرات مگنتیت ( $Fe_3O_4$ ) بر روی الیاف سلولزی خمیر شیمیایی سوزنی‌برگان به منظور تهیه الیاف سلولزی سوپرپارامغناطیس استفاده شد. ابتدا سوسپانسیون الیاف سلولزی در آب دو بار تقطیر، با دمای ۶۵ درجه سانتی‌گراد آماده و سپس کلرید آهن II و III با نسبت ۲ به ۱ به آن اضافه شدند. الیاف تیمار شده از محلول خارج و پس از آبیگری بلافاصله به محلول ۱ مولار هیدروکسید سدیم با دمای ۶۰ درجه سانتی‌گراد منتقل شدند تا فرایند سنتز نانوذرات مغناطیسی تکمیل گردد. الیاف سلولزی-مغناطیسی، پس از شستشو به کاغذ سلولزی-مغناطیسی (MCPap) با گراماژ ۶۰ گرم بر مترمربع تبدیل شدند. با هدف مقایسه، کاغذهایی غیرمغناطیسی (CPap) با گراماژ مشابه تولید شد. کاغذها با رزین اپوکسی دوجزئی اشباع و کامپوزیت کاغذ سلولزی/اپوکسی (EP-CPap) و نانوکامپوزیت کاغذ سلولزی-مغناطیسی/اپوکسی (EP-MCPap) ساخته شدند. آزمون‌های میکروسکوپی، پراش پرتو ایکس، مغناطیس‌سنجی، تعیین خاکستر، کشش استاتیک، جذب آب و واکنش‌دهی ضخامت روی آزمون‌ها انجام و نتایج مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت.

**یافته‌ها:** ریزنگاره‌های FESEM سنتز درجای موفق نانوذرات مغناطیسی کروی بر روی دیواره الیاف سلولزی را تأیید نمود. نتایج آزمون XRD، VSM نشان از سنتز موفق نانوبلورهای مگنتیت با اندازه قطری حدود ۷ نانومتر و رفتار

\* مسئول مکاتبه: mahdimashkour@gmail.com

سوپرپارامغناطیس داشت. سهم وزنی نانوذرات مغناطیسی در کاغذ MCPap، حدود ۱۴/۵ درصد تعیین شد. نتایج آزمون کشش استاتیک، بهبود کاملاً معنادار رفتارهای کششی EP-CPap و EP-MCPap را نسبت به کاغذهای اولیه تأیید نمود. همچنین مقاومت کششی حد شکست EP-MCPap نسبت به EP-CPap تفاوت معناداری را نشان نداد، درحالی‌که کرنش کششی و انرژی حد شکست در EP-MCPap نسبت به EP-CPap به صورت معناداری بیشتر و مدول الاستیسیته آن کوچک‌تر بود. حداکثر جذب آب و واکنش ضخامت آزمون‌ها و نیز سرعت رسیدن به مقادیر حداکثر، در آزمون‌های EP-CPap نسبت به EP-MCPap بیشتر بود.

**نتیجه‌گیری:** مقایسه میکروسکوپی ساختار کاغذهای CPap و MCPap گویای توسعه بیشتر سطح مشترک مابین الیاف سلولزی در کاغذ CPap بود که این مشاهده به تأثیر حضور نانوذرات مغناطیسی بر روی الیاف کاغذ MCPap و اختلال در توسعه سطح مشترک بین الیاف سلولزی همسایه نسبت داده شد. علی‌رغم برتری قابل ملاحظه مقاومت کششی کاغذ CPap نسبت به کاغذ MCPap، احتمالاً به دلیل محدود شدن دسترسی رزین اپوکسی به تمام سطح الیاف در کاغذ CPap، مقاومت کششی نانوکامپوزیت EP-MCPap و کامپوزیت EP-CPap تفاوت معناداری با یکدیگر نداشتند؛ به نظر می‌رسد برخلاف تأثیر منفی حضور نانوذرات مغناطیسی روی ویژگی‌های مکانیکی کاغذ MCPap، با توجه به بافت کم‌تر متراکم این کاغذ، قابلیت نفوذ رزین اپوکسی در آن بهبود یافته و بنابراین رفتارهای کششی و مقاومت به جذب آب و واکنش ضخامت مطلوب‌تری در نانوکامپوزیت EP-MCPap مشاهده می‌گردد. نتایج این مطالعه تأیید نمود که اشیاع ساختار کاغذهای مغناطیسی با رزین اپوکسی موجب بهبود قابل ملاحظه رفتارهای فیزیکی-مکانیکی و در نتیجه توسعه دامنه کاربردی آن‌ها می‌شود.

**واژه‌های کلیدی:** خواص فیزیکی و مکانیکی، رزین اپوکسی، سنتز درجا، کاغذ مغناطیسی، نانوکامپوزیت

### مقدمه

کاغذهای سلولزی-مغناطیسی از پتانسیل‌های کاربردی قابل ملاحظه‌ای به‌ویژه در صنعت الکترونیک، مانند ساخت حافظه‌های مغناطیسی جهت ضبط و حفظ اطلاعات، کارت‌های امنیتی و پوشش‌های محافظت‌کننده در برابر تداخل امواج الکترومغناطیس برخوردارند (۲، ۵، ۷، ۸ و ۱۱). از این رو در چند سال اخیر توجه به این دسته از مواد عملگرایی<sup>۱</sup> مبتنی بر منابع زیستی رو به فزونی است.

برخورداری از امتیازاتی هم‌چون فراوانی و سهولت دسترسی با قیمت پایین، زیست‌پایه، زیست‌تجدیدپذیر و زیست‌تخریب‌پذیر بودن، دانسیته

پایین در عین بهره‌مندی از ویژگی‌های مطلوب مکانیکی، قابلیت اصلاح ویژگی‌های شیمیایی و ضریب انبساط حرارتی جزئی همگی از مواردی هستند که پژوهشگران را به تجسس بیشتر در امکان بهره‌برداری از پتانسیل بسترهای سلولزی در ساخت کامپوزیت‌های و نانوکامپوزیت‌های عمل‌گرایی مغناطیسی، الکتریکی و نوری ترغیب می‌نمایند (۱، ۳، ۶، ۹، ۱۰ و ۱۳). در مقابل این امتیازات، مواردی هم‌چون، تمایل به جذب رطوبت و عدم ثبات ابعادی ناشی از آن می‌تواند به عنوان نکته‌ای منفی در توسعه کاربرد مهندسی بسترهای سلولزی تلقی گردد (۴) و (۷). همچنین ثابت شده است که الیاف سلولزی به‌واسطه دارا بودن منافذ ریز ساختاری، در مقیاس

رفتار سوپرپارامغناطیس در مقابل رفتار فرومغناطیس الیاف به دست آمده از روش بارگذاری حفره، به سبب پوشیده شدن سطح الیاف با نانوذرات مغناطیسی، کاغذهای ساخته شده با الیاف حاصل از فرایند سنتز درجا با افت قابل ملاحظه ویژگی‌های مکانیکی مواجه‌اند که این امر قابلیت به کارگیری آن‌ها را در ساخت محصولات نهایی محدود می‌نماید (۸، ۹ و ۱۱). از این رو، در مهر و موم‌های اخیر تلاش‌هایی پیرامون چگونگی بهبود عملکرد رفتارهای فیزیکی-مکانیکی الیاف و کاغذهای سلولزی مغناطیسی ساخته شده با روش سنتز درجا انجام شده است. مجموعه این تلاش‌ها با هدف توسعه سطح مشترک بین اجزای لیفی-سلولزی ساختار کاغذ مغناطیسی و یا الیاف سلولزی-مغناطیسی و بستر پلیمری پیرامون آن‌ها صورت گرفته است. استفاده از تیمار فراصوت همراه با تنش‌های مکانیکی، افزایش شدت فرایند شستشوی الیاف پس از فرایند سنتز درجا، انحلال جزئی سطح الیاف سلولزی-مغناطیسی با حلال شیمیایی، افزایش شدت تیمار پالایش روش‌هایی هستند که با هدف حذف بیش‌تر نانوذرات مغناطیسی از سطح الیاف سلولزی مغناطیسی تهیه شده با روش سنتز درجا گزارش شده‌اند (۸ و ۱۱). مشکور و همکاران (۲۰۱۷) روش لایه‌دار کردن با رزین اپوکسی را برای فیلم‌های سلولزی-مغناطیسی تهیه شده از سلولز باکتری با روش سنتز درجا بررسی نموده و اعلام کردند نتایج حاصل نشان از بهبود رفتارهای فیزیکی و مکانیکی نانوکامپوزیت لایه‌ای ساخته شده در مقایسه با فیلم سلولزی-مغناطیسی اولیه داشت؛ به طوری که ضمن حفظ انعطاف پذیری، مدول الاستیسیته و مقاومت کششی فیلم‌های لایه‌دار شده به ترتیب ۲۸۰ و ۲۴۰ درصد افزایش یافت و مقادیر جذب آب و واکنشیدگی ضخامت ناشی از آن، به ترتیب تا حدود ۴۳ و ۴۲ درصد کاهش یافت.

نانومتری، می‌تواند به عنوان نانورآکتورهای کارآمد جهت سنتز درجای بسیاری از انواع نانوذرات معدنی به ویژه انواع اکسیدهای فلزی عمل‌گرا مانند نانوذرات مغناطیسی مگنتیت و هماتیت به کار گرفته شوند (۸).

الیاف سلولزی-مغناطیسی عمدتاً با دو روش از الیاف سلولزی گیاهی به دست می‌آیند که عبارت‌اند از: روش بارگذاری حفره و روش سنتز درجای نانوذرات مغناطیسی (۵). در روش بارگذاری حفره، غالب گزارش‌های منتشر شده مبتنی بر استفاده از ذرات مغناطیسی از پیش تهیه شده در مقیاس میکرومتری است که معمولاً با اعمال نیروی مکانیکی از طریق منافذ میکرونی موجود در دیواره الیاف به درون حفره لیف وارد می‌شوند و در آن‌جا مجتمع شده و به دام می‌افتند. الیاف سلولزی-مغناطیسی به دست آمده با این روش عموماً سطحی عاری از ذرات مغناطیسی داشته و رفتار مغناطیسی از نوع فرومغناطیس از خود نشان می‌دهند؛ به این مفهوم که الیاف سلولزی فرومغناطیس، در عدم حضور میدان مغناطیسی خارجی اعمال شده، هم‌چنان مغناطش خود را حفظ می‌نمایند. در مقابل الیاف سلولزی-مغناطیسی تهیه شده با روش سنتز درجا، به سبب ماهیت روش استفاده شده و شکل‌گیری ذرات مغناطیسی نانومتری و جایگیری آن‌ها درون منافذ و روی سطوح الیاف، رفتار سوپرپارامغناطیس نشان می‌دهند؛ ضمن آن‌که سطح خارجی این الیاف عموماً با لایه‌ای از نانوذرات مغناطیسی پوشیده شده است (۵، ۷، ۱۱ و ۱۲). الیاف سلولزی سوپرپارامغناطیس تا مادامی که تحت اثر یک میدان مغناطیسی خارجی قرار دارند، مغناطیس پذیری بالایی از خود نشان می‌دهند و در صورت حذف میدان مغناطیسی خارجی اعمال شده اثری از مغناطش در آن‌ها باقی نخواهد ماند. نتایج پژوهش‌های منتشر شده نشان می‌دهد، علی‌رغم امتیاز الیاف سلولزی مغناطیسی تهیه شده با روش سنتز درجا به واسطه ارائه

کاربردی آن‌ها، این مطالعه با هدف تبدیل کاغذ سلولزی سوپرپارامغناطیس به نانوکامپوزیت سوپرپارامغناطیس الیاف سلولزی/رزین اپوکسی و مقایسه ویژگی‌های فیزیکی-مکانیکی این دو نوع فراورده مهندسی انجام شد.

### مواد و روش‌ها

مواد: فهرست مواد مصرفی در این مطالعه به شرح جدول ۱ می‌باشد.

استفاده از رزین اپوکسی، به‌عنوان یکی از رزین‌های مهندسی کارآمد در ترکیب با الیاف و نانوالیاف سلولزی، در سال‌های اخیر به‌شدت مورد توجه پژوهشگران علم مواد قرار گرفته است. رزین اپوکسی به سبب ساختار شیمیایی خود، برهم‌کنش مناسبی با بسترهای سلولزی نشان داده و می‌تواند با آن‌ها پیوند شیمیایی کووالانسی برقرار نماید (۷).

با توجه به اهمیت کیفیت رفتارهای فیزیکی-مکانیکی فراورده‌های مهندسی در توسعه دامنه

جدول ۱- فهرست مواد مصرفی.

Table 1. List of used materials.

ردیف Row	مواد Materials	نام تجاری/ فرمول شیمیایی Commercial name/ Chemical formula	تهیه شده از شرکت/کارخانه Company/Factory
1	خمیر الیاف بلند وارداتی Imported long- fiber pulp	-	صنایع چوب و کاغذ مازندران Mazandaran wood & paper industries
2	کلرید آهن (II) آبدار Ferrous chloride tetrahydrate	FeCl <sub>2</sub> . 4H <sub>2</sub> O	Merck Co.
3	کلرید آهن (III) آبدار Ferric chloride hexahydrate	FeCl <sub>3</sub> . 6H <sub>2</sub> O	Merck Co.
4	هیدروکسید سدیم Sodium hydroxide	NaOH	Merck Co.
5	رزین اپوکسی Epoxy resin	CY219	Huntsman
6	هاردنر اپوکسی Epoxy hardener	Hy5161	Huntsman
7	آب دو بار تقطیر Twice distilled water	H <sub>2</sub> O	زالال طب شیمی Zolal teb shimi Co.

### روش‌ها

- تهیه الیاف سلولزی-مغناطیسی و ساخت کاغذ: در این پژوهش، تولید الیاف سلولزی-مغناطیسی، به روش سنتز درجای نانوذرات مغناطیسی در حضور الیاف سلولزی و مطابق با شرایط اعلام‌شده توسط

مشکور و همکاران (۲۰۱۱ و ۲۰۱۴) انجام شد (۸) و (۹). ابتدا حدود ۲۰ گرم خمیر الیاف بلند وارداتی به حجم مشخصی از آب دو بار تقطیر افزوده شد و تا رسیدن به دمای ۶۵ درجه سانتی‌گراد حرارت‌دهی شد. با هدف اکسیژن‌زدایی و یکنواخت شدن شرایط در

- اشباع کاغذ با رزین اپوکسی و ساخت کامپوزیت و نانوکامپوزیت: به منظور اشباع کاغذها با رزین اپوکسی و ساخت نانوکامپوزیتها از فرایندی ابداعی متشکل از چندین گام استفاده شد تا از نفوذ حداکثری رزین درون ساختار کاغذها اطمینان حاصل گردد. در این مرحله، کاغذهای تهیه شده در دو نوع مغناطیسی و غیرمغناطیسی (به عنوان تیمار شاهد)، با استفاده از رزین اپوکسی دو جزئی لایه دار شدند. برای این منظور، ابتدا، ۶ گرم مخلوط رزین اپوکسی CY219 و هاردنر آمینی آن (Hy 5161)، با نسبت ۲ به ۱ با آماده و بر روی یک فیلم پلی پروپیلنی ریخته شد و کاغذها به صورت منفرد، روی رزین قرار داده شدند تا رزین به آرامی تحت اثر نیروی موئینگی درون بافت کاغذ نفوذ کند. پس از آن که رزین در تمام کاغذ ساختار کاغذ نفوذ نمود، فیلم پلی پروپیلنی دیگری بر روی کاغذ قرار داده شده و با روش غلطک زنی رزین اضافی از ساختار کاغذ خارج شد. از فرایند پرس سرد، با فشار مؤثر ۱۰۰ bar به منظور اطمینان از ایجاد حداکثر فشردگی و نفوذ رزین در ساختار کاغذها استفاده شد. پس از خارج کردن از پرس سرد، با استفاده از دو اسلاید شیشه‌ای و گیره‌های فلزی، کاغذ آغشته به رزین که در بین دو فیلم پلی پروپیلنی هم‌چنان به صورت ساندریج شده بود، تحت فشردگی مجدد قرار گرفته و با هدف گیرا شدن رزین، به آونی با دمای ۶۰ درجه سانتی‌گراد، برای مدت زمان ۲ ساعت منتقل شد. در پایان این زمان، اسلایدهای شیشه‌ای و فیلم‌های پلی پروپیلنی جدا شده و کامپوزیتها و نانوکامپوزیت‌های ساخته شده خارج شدند. تیمارهای مورد مطالعه در این پژوهش به شرح جدول ۲ می‌باشند.

کل محیط واکنش از جریان دائمی گاز نیتروژن و هم‌زدن مکانیکی در کل زمان فرایند سنتز درجای نانوذرات مغناطیسی استفاده شد. پس از گذشت حدود ۲۰ دقیقه، نمک‌های آبدار کلریدهای آهن III و II با نسبت‌های مولی ۲ به ۱ (۰/۱۲ - ۰/۰۶) توزین و به سوسپانسیون خمیر اضافه شد. بعد از ۳۰ دقیقه از زمان افزودن کاتیون‌های آهن و اطمینان از انحلال و نفوذ کامل یونها درون ساختار الیاف، الیاف تیمار شده بر روی یک توری پلیمری آبگیری و بلافاصله به درون محلول ۱ مولار هیدروکسید سدیم (NaOH)، با حجم مشابه و دمای ۶۰ درجه سانتی‌گراد منتقل شد تا فرایند سنتز درجا و شکل‌گیری نانوذرات مغناطیسی در حضور الیاف پیش رود. به محض ورود الیاف تیمار شده به درون محلول هیدروکسید سدیم، رنگ آنها از نارنجی روشن به سیاه تغییر کرد که این پدیده به سنتز موفق نانوذرات مگنتیت ( $Fe_3O_4$ ) نسبت داده شد. ۳۰ دقیقه دیگر نیز زمان داده شد تا از نفوذ کامل قلیا درون الیاف و سنتز یکنواخت نانوذرات مغناطیسی بر روی آنها اطمینان حاصل گردد. الیاف سلولزی-مغناطیسی تهیه شده پس از خروج از محلول NaOH، با استفاده از آب دو بار تقطیر شستشو شد تا مواد شیمیایی و نانوذرات اضافی حذف و pH به محدوده خنثی نزدیک شود. الیاف مغناطیسی پس از آبگیری تا زمان استفاده درون کیسه‌های پلی اتیلنی نگهداری شدند. ساخت کاغذهای مغناطیسی با روش کاغذسازی دستی، مطابق استاندارد TAPPI 202 om-88 و با هدف تهیه کاغذهایی با گراماژ اسمی  $60 g/m^2$  انجام شد. کاغذهای ساخته شده برای مدت ۴۸ ساعت در شرایط دمایی رطوبتی هوای آزمایشگاه منابع طبیعی کشاورزی گرگان خشک شدند.

جدول ۲- فهرست تیمارها.

Table 2. List of treatments.

تیمار <i>Treatment</i>	کد اختصاری <i>Abbreviated code</i>
کاغذ سلولزی Cellulose paper	CPap
کاغذ سلولزی-مغناطیسی Magnetic cellulose paper	MCPap
کامپوزیت کاغذ سلولزی/رزین اپوکسی Cellulose composite/ epoxy resin	EP-CPap
نانوکامپوزیت سلولزی-مغناطیسی/رزین اپوکسی Magnetic cellulose nanocomposite/epoxy resin	EP-MCPap

سلولزی انجام شد. ارزیابی ویژگی مغناطیسی نمونه‌ها، در دمای اتاق ( $23 \pm 2$  درجه سانتی‌گراد) و با استفاده از دستگاه مغناطیس‌سنج نمونه ارتعاشی (VSM)، مدل MDKB، ساخت شرکت مغناطیس دقیق کویر (کاشان-ایران) انجام شد. دستگاه VSM بر اساس قانون القای فارادی کار می‌کند و خروجی آن یک منحنی با عنوان منحنی هیستریسیس می‌باشد. از روی این منحنی می‌توان خاصیت مغناطیسی ماده در دماهای مختلف را تعیین نموده و هم‌چنین کمیت‌هایی هم‌چون مغناطش اشباع، مغناطش پسماند و میدان وادارندگی را برای نمونه‌ها مشخص کرد. عدم مشاهده حلقه پسماند در منحنی مغناطش مواد مغناطیسی، دلالت بر رفتار سوپرپارامغناطیس نمونه دارد. مطالعه رفتار کششی نمونه‌ها تحت بار استاتیکی توسط یک دستگاه تست کشش، مدل STM-1 ساخت شرکت صنتام (ایران) صورت گرفت. طول دهانه ۵۰ mm و سرعت بارگذاری ۱ mm/min و حداقل ۶ تکرار برای هر تیمار در نظر گرفته شد. جذب آب و واکنشیدگی ضخامت، با روش غوطه‌وری، در یک دوره زمانی ۱۹۸ ساعته و به‌صورت دوره‌ای اندازه‌گیری شد و مقادیر مذکور با استفاده از رابطه‌های ۲ و ۳ محاسبه شد.

- ارزیابی ویژگی‌های ساختاری، فیزیکی و مکانیکی  
آزمونه‌ها: مطالعه ریزساختار کاغذها و کامپوزیت‌های ساخته‌شده با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدان (FESEM)، Hitachi S-4800، ساخت کشور ژاپن و میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)، مدل SEMART ساخت کشور کره جنوبی انجام شد. شناسایی فازی نانوذرات مغناطیسی سنتز شده با دستگاه پراش پرتو ایکس، مدل PW1730، ساخت شرکت فیلیپس کشور هلند، مجهز به منبع اشعه کاتودی مس (طول موج ۱/۰۵۴۵۶ آنگستروم)، با ولتاژ ۴۰kV و شدت جریان ۳۰mA، در زوایای ۲ تا ۱۰ درجه اندازه‌گیری شد. اندازه بلور نانوذرات مغناطیسی سنتز شده با معادله شرر محاسبه شد (رابطه ۱).

$$D=0.89\lambda/\beta\cos\Theta \quad (1)$$

که در آن، (D) اندازه نانوبلور، ( $\lambda$ ) طول موج، ( $\beta$ ) پهنای پیک در نصف ارتفاع آن (رادیان) و  $\Theta$  زاویه براگ (درجه) می‌باشد. از آزمون تعیین خاکستر مطابق استاندارد شماره TAPPI T211 om-02 به‌منظور محاسبه مقدار وزنی نانوذرات سنتز شده بر روی الیاف

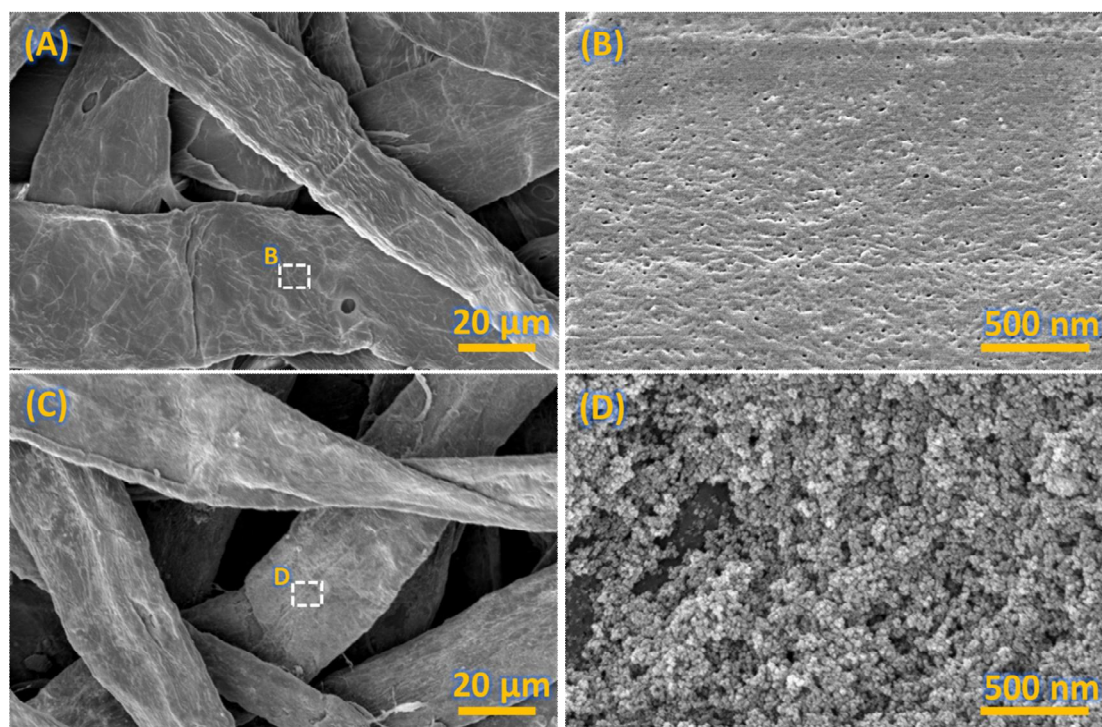
سنتز شده در سطح الیاف، به صورت چندلایه، پوششی را بر روی دیواره خارجی الیاف به وجود آورده‌اند؛ به‌صورتی‌که نانوذرات قرار گرفته در لایه‌های خارجی‌تر در اتصال مستقیم با سطح الیاف سلولزی نبوده و پراکنش آن‌ها نیز در کل سطح کاملاً یکنواخت نیست. به‌طورکلی، می‌توان چنین بیان نمود که طی سنتز درجای نانوذرات مغناطیسی، ریزساختار سطح الیاف تیمار شده نسبت به الیاف بکر اولیه دگرگون می‌شود، به‌گونه‌ای که دیگر امکان تماس مستقیم سلولز-سلولز بین الیاف سلولزی-مغناطیسی همسایه فراهم نمی‌باشد (۷). متوسط ابعاد نانوذرات مغناطیسی سنتز شده بر روی الیاف، در میکروگراف‌های FESEM حدود ۱۸ نانومتر محاسبه شد.

$$(۲) \quad \text{جذب} = \frac{\text{وزن اولیه} - \text{وزن ثانویه}}{\text{وزن اولیه}} \times 100 \quad \text{آب (\%)}$$

$$(۳) \quad \text{واکسیدگی} = \frac{\text{ضخامت ثانویه} - \text{ضخامت اولیه}}{\text{ضخامت اولیه}} \times 100 \quad \text{ضخامت (\%)}$$

### نتایج و بحث

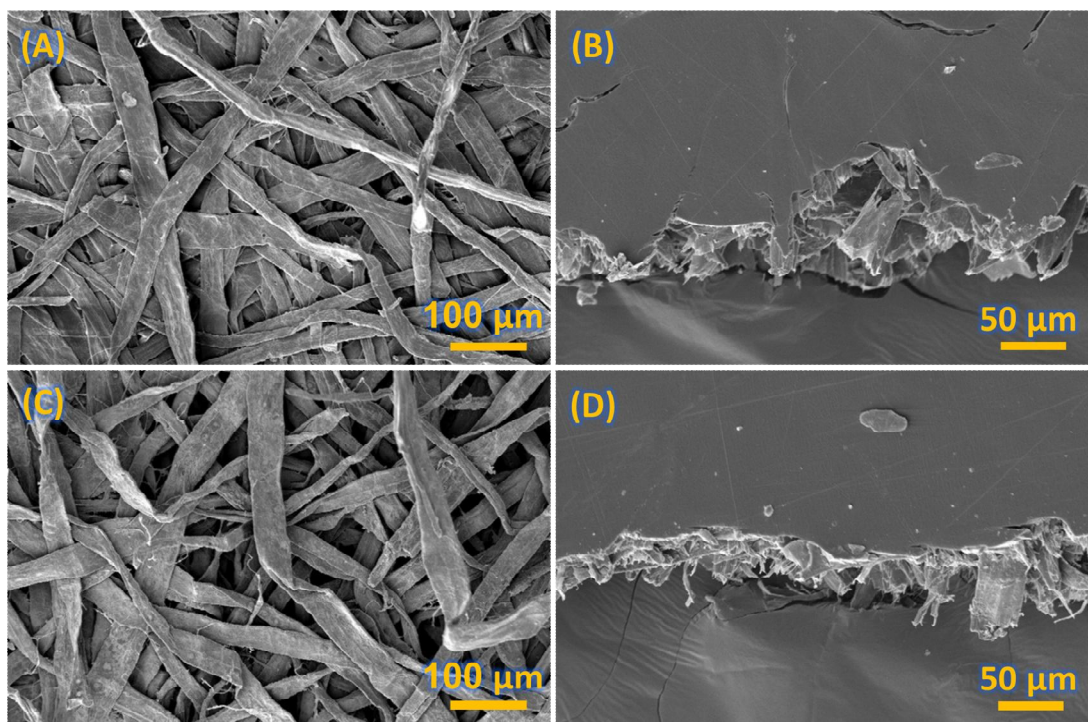
شکل ۱ میکروگراف‌های FESEM به‌دست آمده از سطح الیاف سلولزی را قبل و پس از فرایند سنتز درجای نانوذرات مغناطیسی نشان می‌دهد. آن‌چنان‌که مشاهده می‌شود، نانوذرات کروی نانومتری سطح الیاف سلولزی تیمار شده در فرایند سنتز درجا را پوشانده‌اند. هم‌چنین، ملاحظه می‌شود که نانوذرات



شکل ۱- ریزنگاره میکروسکوپ الکترونی نمونه الیاف CPap (A و B) و MCPap (C و D).  
Figure 1. FESEM micrographs of CPap (A and B) and MCPap (C and D) fibers.

سلولز باکتری مغناطیسی، قبل و پس تبدیل شدن به نانوکامپوزیت سه لایه با رزین اپوکسی، گزارش کردند (۷). از سوی دیگر تصویر حاصل از محل شکست کششی فیلم‌های کامپوزیت و نانوکامپوزیت EP-CPap و EP-MCPap نشان از درگیری و برهم‌کنش مناسب الیاف با رزین اپوکسی استفاده شده حین فرایند آغشته‌سازی و اشباع کاغذها دارد؛ چرا که محل در شکست کششی هر دو فیلم، الیاف سالم بیرون کشیده شده از داخل ماده زمینه پلیمری چندان دیده نمی‌شود. این مشاهدات نشان از نفوذ مناسب رزین اپوکسی به درون ساختار کاغذها و تشکیل ماده زمینه‌ای با پیوستگی مناسب درون ساختار کامپوزیت و نانوکامپوزیت ساخته شده دارد.

شکل ۲ ریزنگاره‌های SEM به دست آمده از سطح کاغذهای سلولزی و سلولزی-مغناطیسی و سطح و محل شکست کششی کامپوزیت و نانوکامپوزیت سلولزی-مغناطیسی ساخته شده را نشان می‌دهد. بررسی و مقایسه تصاویر حاصل از سطح دو کاغذ سلولزی (CPap) و سلولزی-مغناطیسی (MCPap) نشان از توسعه بیشتر سطح مشترک در ساختار کاغذ CPap دارد. با توجه به آنچه در توضیح ریزنگاره‌های شکل ۱ نیز بیان شد، کاهش برهم‌کنش الیاف همسایه در کاغذ MCPap به حضور نانوذرات مغناطیسی در سطح الیاف و عدم امکان تماس مستقیم سلولز-سلولز دو لایه همسایه درون بافت این کاغذ نسبت داده شد. مشکور و همکاران (۲۰۱۷) نتایج مشابهی را در مورد فیلم نانوکامپوزیت

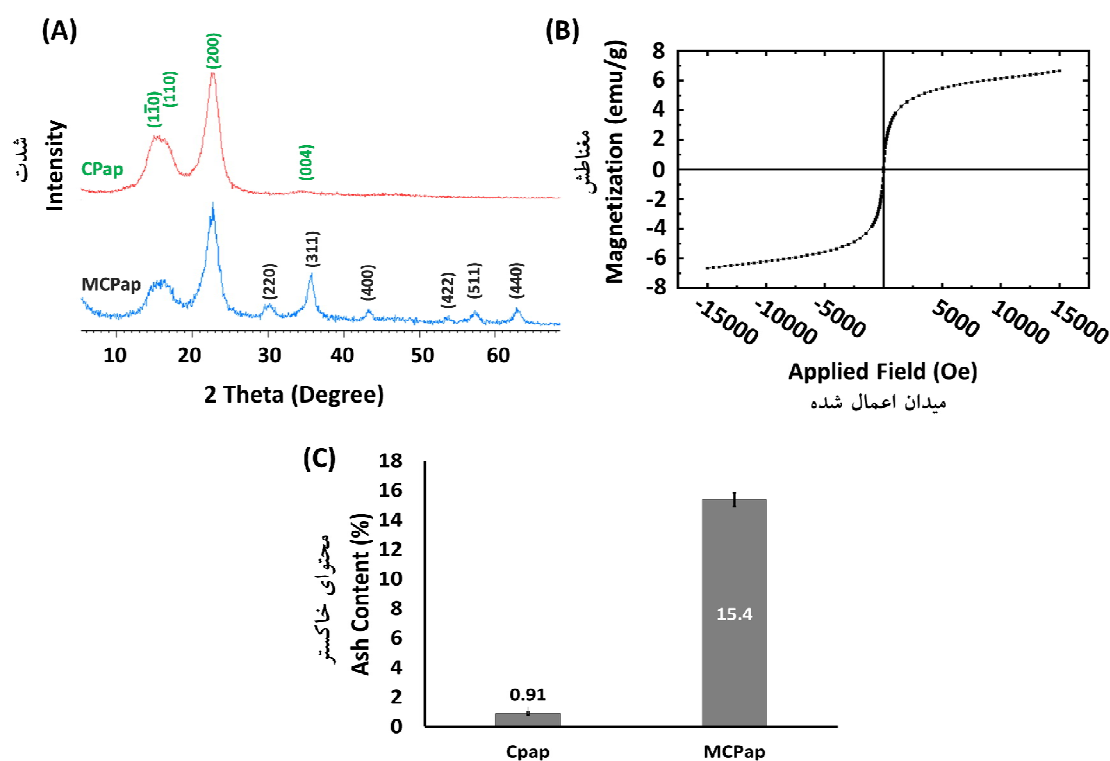


شکل ۲- ریزنگاره میکروسکوپ الکترونی نمونه‌های (A) CPap، (B) EP-CPap، (C) MCPap و (D) EP-MCPap. Figure 2. SEM micrographs of (A) CPap, (B) EP-CPap, (C) MCPap and (D) EP-MCPap specimens.



ارزیابی رفتار مغناطش کاغذ MCPap با آزمون VSM صحت این پیش‌بینی را تأیید نمود. همان‌طور که در منحنی مغناطش کاغذ MCPap مشاهده می‌شود، عدم وجود پسماند و وادارندگی نشان از رفتار سوپرپارامغناطیس آن در شرایط دمایی اتاق ( $23 \pm 2$  درجه سانتی‌گراد) دارد. مقدار مغناطش اشباع برای کاغذ MCPap حدود  $7 \text{ emu/g}$  به‌دست آمد. مشکور و همکاران (۲۰۱۱، ۲۰۱۴ و ۲۰۱۷) به نتایج مشابهی در خصوص سنتز درجای نانوذرات مغناطیسی بر روی بسترهای سلولزی دست یافتند (۷، ۸ و ۹). اندازه‌گیری و مقایسه مقادیر خاکستر به‌جای مانده از کاغذهای CPap و MCPap نشان داد که نانوذرات مغناطیسی سنتز شده، حدود  $14/5$  درصد وزن کاغذ MCPap را تشکیل می‌داد.

شکل ۳ نتایج بلورشناسی، مغناطیس‌سنجی و اندازه‌گیری محتوای خاکستر کاغذهای CPap و MCPap را نشان می‌دهد. مقایسه نتایج آزمون پراش پرتوایکس کاغذ MCPap و CPap، سنتز و شکل‌گیری موفق نانوذرات مغناطیسی از نوع مگنتیت ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) در نتیجه انجام فرایند سنتز درجا در حضور الیاف سلولزی را تأیید نمود و پیک‌های مشاهده شده در الگوی پراش پرتوایکس کاغذ MCPap به خوبی با الگوی مرجع (JCPDS No.01075-0033) انطباق داشت. با استفاده از معادله شرر و پیک تظاهر یافته با اندیس میلر (۳۱۱)، متوسط اندازه بلور نانوذرات مگنتیت سنتز شده حدود  $7 \text{ nm}$  به‌دست آمد که این مقدار کوچک‌تر از شعاع بحرانی نانوذرات مگنتیت بود؛ و بنابراین انتظار می‌رفت نانوذرات سنتز شده مذکور رفتار سوپرپارامغناطیس از خود نشان دهند.



شکل ۳- (A) الگوی پراش پرتو ایکس، (B) رفتار مغناطیسی و (C) محتوای خاکستر آزمون‌های CPap و MCPap.

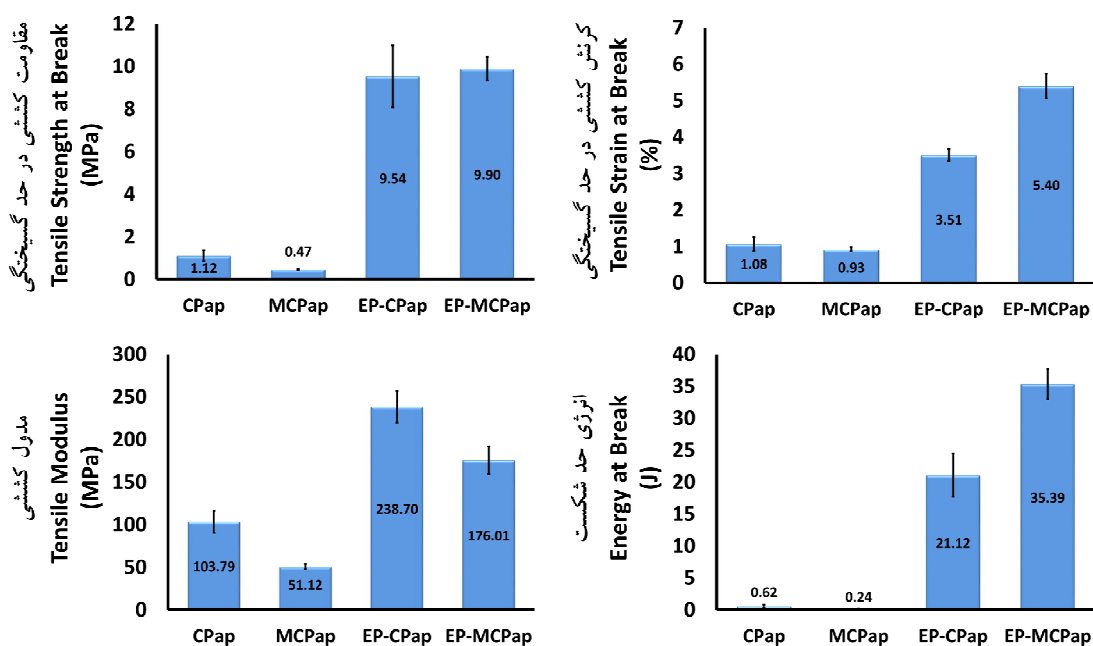
Figure 3. (A) XRD pattern, (B) Magnetization behavior, and (C) Ash content of the CPap and MCPap specimens.

اعمال شده مشاهده گردید. مشکور و همکاران (۲۰۱۷) نتایج مشابهی را در خصوص اصلاح رفتار کششی فیلم‌های نانوکامپوزیت سوپرپارامغناطیس سلولز باکتری پس از آغشته‌سازی با رزین اپوکسی گزارش نمودند (۷). بررسی مقایسه رفتار کامپوزیت EP-CPap و نانوکامپوزیت EP-MCPap در برابر بار کششی وارده نشان داد که در نانوکامپوزیت EP-CPap مقدار کرنش کششی در حد گسیختگی و انرژی شکست به میزان قابل ملاحظه‌ای، (به ترتیب، حدود ۵۴ درصد و ۶۷/۵ درصد)، بیش از مقادیر به دست آمده برای کامپوزیت EP-CPap بود. از سوی دیگر، مدول الاستیسته کششی کامپوزیت EP-CPap، حدود ۳۶ درصد، بیش از مقدار به دست آمده برای نانوکامپوزیت EP-MCPap بود. در توضیح این نتایج، باید به نقش نانوذرات مغناطیسی اشاره کرد؛ چنین به نظر می‌رسد که حضور نانوذرات مغناطیسی، به صورت پوششی چندلایه بر روی دیواره الیاف سلولزی (آن‌چنان که در توضیح شکل ۱ بیان شد)، در ساختار نانوکامپوزیت EP-MCPap، از تماس مستقیم رزین اپوکسی و الیاف سلولزی به صورت مؤثر جلوگیری نموده و بنابراین در مقایسه با کامپوزیت EP-CPap تراکم اتصالات کووالانسی محتمل بین فاز ماتریس اپوکسی و الیاف سلولزی به مقدار قابل توجهی کاهش یابد؛ از سوی دیگر به سبب ساختار چندلایه پوشش نانوذرات مغناطیسی بین دو فاز ماتریس و تقویت کننده و فرم هندسی کروی این ذرات، به هنگام بارگذاری کششی به نظر می‌رسد قابلیت جابه‌جایی الیاف در فاز ماتریس در ساختار فیلم‌های نانوکامپوزیتی EP-MCPap بیش از کامپوزیت EP-CPap فراهم بوده و بنابراین مقادیر کرنش کششی ثبت شده بزرگ‌تر می‌باشد. با توجه به مقادیر کرنش کششی بزرگ‌تر در فیلم‌های EP-MCPap، آن‌چنان که انتظار می‌رفت انرژی شکست نیز افزایش یافت. در توضیح نتایج به دست

شکل ۴ نتایج به دست آمده از رفتار آزمونه‌ها تحت بارگذاری کششی استاتیک را نشان می‌دهد. به طور کلی، فرایند آغشته‌سازی کاغذها به رزین و تبدیل آن‌ها به کامپوزیت و نانوکامپوزیت باعث بهبود قابل ملاحظه رفتار کششی آزمونه‌ها گردید. به طوری که مقاومت کششی کامپوزیت EP-CPap و نانوکامپوزیت EP-MCPap نسبت به کاغذهای اولیه استفاده شده در ساختار آن‌ها، به ترتیب، حدود ۷۵۲ درصد و ۲۰۰۶ درصد افزایش یافت. همان‌گونه که دیده می‌شود، بهبود مقاومت کششی در نتیجه تبدیل کاغذ MCPap به نانوکامپوزیت EP-MCPap حدود ۱۶۷ درصد بیش از بهبود مقاومت کششی حاصل از تبدیل کاغذ Cpap به کامپوزیت EP-CPap می‌باشد. علت این امر نیز مقاومت کششی پایین‌تر ذاتی کاغذ MCPap در مقایسه با کاغذ Cpap می‌باشد (حدود ۵۸ درصد) که آن‌چنان که در تعریف مسأله نیز به عنوان چالش الیاف سلولزی-مغناطیسی بیان شد، مربوط به حضور نانوذرات مغناطیسی در سطح الیاف و ممانعت فضایی آن‌ها از برهمکنش مؤثر سلولز-سلولز الیاف همسایه است. علی‌رغم بهبود قابل ملاحظه مقاومت کششی در فیلم‌های کامپوزیت و نانوکامپوزیت نسبت به کاغذ اولیه سازنده ساختار آن‌ها، تفاوت مقاومت کششی کامپوزیت EP-CPap و نانوکامپوزیت EP-MCPap معنادار نبود. بررسی الگوی تغییرات مقادیر کرنش کششی حداکثر، مدول الاستیسته و انرژی شکست، همگی بهبود قابل ملاحظه رفتار کششی کامپوزیت‌ها و نانوکامپوزیت‌ها را نسبت به کاغذهای اولیه نشان داد؛ افزایش پیوستگی درون ساختاری پس از نفوذ رزین اپوکسی به درون بافت کاغذها و گیر شدن آن در فضاهای بین لیفی، شبکه‌ای توسعه یافته را در برابر تنش کششی وارده ایجاد نمود و بنابراین با کاهش تمرکز تنش، بهبود قابل توجهی در رفتار کامپوزیت و نانوکامپوزیت ساخته شده در مقابل، بار کششی

به‌دست آمد؛ بنابراین بر متناسب با قانون هوک، همان‌طورکه انتظار می‌رفت مدول الاستیسته کششی نانوکامپوزیت EP-MCPap مقادیر کوچک‌تری را نسبت به کامپوزیت EP-CPap نشان داد.

آمده برای مدول الاستیسته کششی نیز آن‌چنان که مشاهده شد، مقادیر مقاومت کششی فیلم‌های EP-CPap و EP-MCPap، تفاوت معناداری با یکدیگر نشان نداد، حال آن‌که کرنش کششی فیلم EP-MCPap به‌میزان قابل‌توجهی بیشتر از فیلم EP-CPap



شکل ۴- مقاومت حد گسیختگی، کرنش حد گسیختگی، مدول الاستیسته و انرژی حد شکست نمونه‌ها در آزمون کشش استاتیکی.

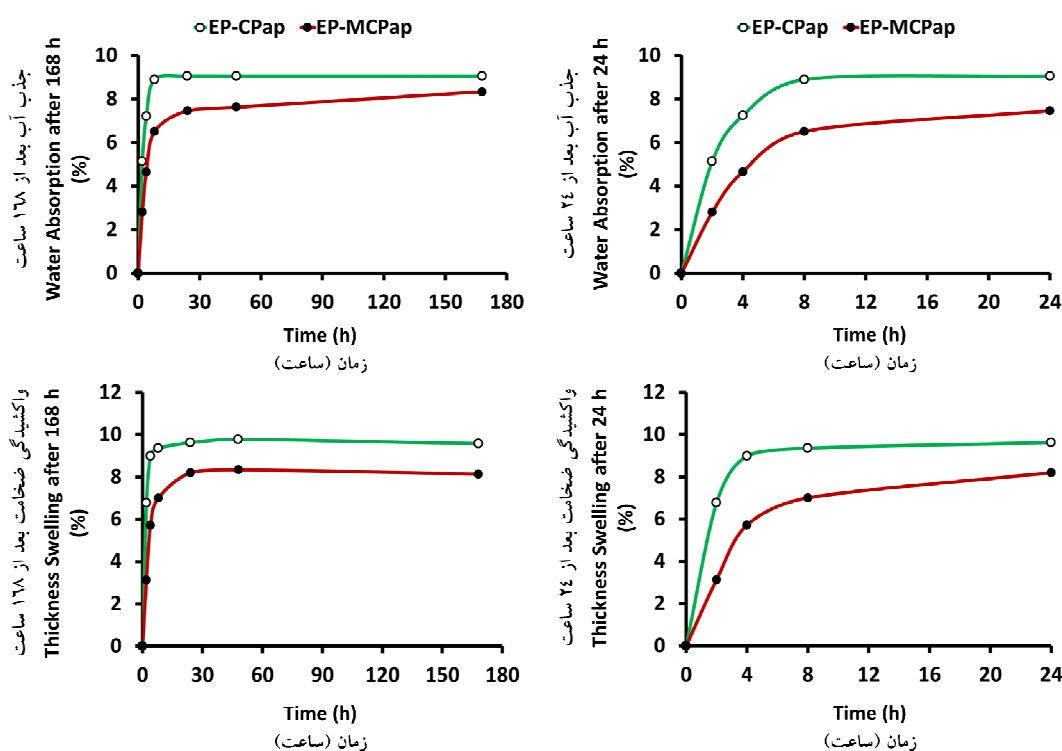
Figure 4. Strength at break, strain at break, elastic modulus and energy at break of the specimens in static tensile test.

آزمونه‌های EP-MCPap اتفاق افتاد. حداکثر جذب آب و واکنشیدگی ضخامت در کامپوزیت EP-CPap، به‌ترتیب، پس از حدود ۸ ساعت و ۴ ساعت اتفاق افتاد و در نانو کامپوزیت EP-MCPap حتی پس از گذشت ۱۸۰ ساعت از غوطه‌وری جذب آب با شیب بسیار ملایم در حال افزایش بود و مقدار واکنشیدگی ضخامت تا حدود ۲۴ ساعت بعد از زمان غوطه‌وری ادامه داشت. در توضیح نتایج جذب آب و واکنشیدگی ضخامت لازم است به تأثیر حضور و عدم حضور نانوذرات مغناطیسی اشاره نمود. آن‌چنان که بیان شد سنتز نانوذرات در سطح الیاف سلولزی توسعه سطح

شکل ۵ رفتار جذب آب و واکنشیدگی ضخامت بلندمدت نمونه‌های EP-CPap و EP-MCPap را نشان می‌دهد. به‌طورکلی، نمونه‌های EP-CPap در مقایسه با نمونه‌های EP-MCPap مقادیر جذب آب و واکنشیدگی ضخامت بیشتری را در طول زمان غوطه‌وری از خود نشان دادند. نتایج، الگوی رفتاری مشابهی را در دو آزمون جذب آب و واکنشیدگی ضخامت نمونه‌ها نشان می‌دهد. بررسی الگوهای به‌دست‌آمده گویای آن است که رسیدن به حداکثر میزان جذب آب و واکنشیدگی ضخامت در نمونه‌های EP-CPap در زمان کوتاه‌تری در مقایسه با

برهمکنش هیدروژنی بین الیاف همسایه محدودتر از کاغذ MCPap باشد؛ بنابراین جذب آب و واکنشیدگی ضخامت در کامپوزیت EP-CPap نسبت به نانوکامپوزیت EP-MCPap بیشتر می‌باشد. نتایج مشابهی در خصوص اثر آغشته‌سازی فیلم سلولز باکتری و نانوکامپوزیت سلولز باکتری سوپرپارامغناطیس با رزین اپوکسی بر جذب آب و واکنشیدگی ضخامت آزمون‌ها گزارش شده است (۷).

مشترک لیف سلولزی-لیف سلولزی و لیف سلولزی-ماتریس اپوکسی را محدود می‌نماید که در نتیجه آن رفتار جذب آب و واکنشیدگی ضخامت آزمون‌های EP-CPap و EP-MCPap متفاوت می‌شود. چنین به نظر می‌رسد، با توجه به برهمکنش مطلوب الیاف سلولزی با یکدیگر در ساختار کاغذ CPap، به هنگام آغشته‌سازی این کاغذ با رزین اپوکسی، دسترسی رزین به کل سطح هر لیف و اتصال با آن به سبب



شکل ۵- منحنی‌های جذب آب و واکنشیدگی ضخامت آزمون‌ها طی ۲۴ و ۱۶۸ ساعت غوطه‌وری.

Figure 5. Water absorption and thickness swelling of specimens during immersion times of 24 and 168 h.

کامپوزیت EP-CPap و نانوکامپوزیت EP-MCPap شدند. نتایج حاصل از آزمون‌های میکروسکوپی FESEM، پراش پرتوایکس و مغناطیس‌سنجی، سنتز موفق نانوذرات سوپرپارامغناطیس مگنتیت ( $Fe_3O_4$ ) بر روی الیاف سلولزی را تأیید نمود که به صورت پوششی چند لایه الیاف سلولزی را در بر گرفته بودند.

### نتیجه‌گیری

در این مطالعه، نخست با روش سنتز درجا، الیاف سلولزی-مغناطیسی تهیه و سپس با کاغذسازی دستی دو نوع کاغذ CPap و MCPap ساخته شد. با هدف اصلاح رفتار فیزیکی-مکانیکی، هر دو نوع کاغذ ساخته شده، با رزین اپوکسی اشباع شده و تبدیل به

در حد گسیختگی که دو نمونه تفاوت معناداری را نشان نداد، کرنش کششی و انرژی شکست کششی در نمونه‌های EP-MCPap به صورت معنادار نسبت به نمونه‌های EP-CPap بالاتر به دست آمد؛ در مقابل مدول الاستیسته کششی EP-MCPap نسبت به EP-CPap پایین‌تر بود. دلیل این مشاهدات نیز به نقش نانوذرات مغناطیسی کروی در قالب پوششی چند لایه بر روی الیاف و ممانعت از توسعه مؤثر سطح مشترک لیف سلولزی-لیف سلولزی-رزین اپوکسی نسبت داده شد. مقادیر جذب آب و واکنشیدگی ضخامت و نیز سرعت رسیدن به مقادیر حداکثر ارزیابی شده در نمونه‌های EP-CPap نسبت به EP-MCPap در کل زمان ۱۶۸ ساعت غوطه‌وری بالاتر بود. دلیل این امر به ویژگی کاغذ اولیه CPap و برهمکنش مطلوب سلولز-سلولز الیاف همسایه نسبت داده شد که احتمالاً سطح دسترسی و پوشش تمام سطح الیاف را برای رزین اپوکسی حین فرایند آغشته‌سازی محدود می‌نماید.

آزمون تعیین خاکستر، سهم وزنی نانوذرات مگنتیت سنتز شده در ساختار کاغذهای MCPap را حدود ۱۴/۵ درصد نشان داد. مقایسه ساختار کاغذهای CPap و MCPap گویای برهمکنش مطلوب‌تر الیاف سلولزی با یکدیگر در کاغذ CPap که این مشاهده به اثر حضور نانوذرات مغناطیسی بر روی الیاف سازنده کاغذ MCPap و تأثیر منفی آن‌ها در توسعه سطح مشترک لیف سلولزی-لیف سلولزی نسبت داده شد و نتایج آزمون کشش استاتیک کاغذها نیز این امر را تأیید نمود. تصاویر SEM محل شکست نمونه‌های EP-CPap و EP-MCPap دلالت بر نفوذ مؤثر رزین اپوکسی به درون بافت هر دو نوع کاغذ CPap و MCPap داشته و برهمکنش مطلوب رزین اپوکسی با الیاف سازنده آن‌ها را تأیید نمود. نتایج حاصل از آزمون کشش استاتیک نیز نشان داد مجموعه رفتارهای کششی ارزیابی شده به صورت کاملاً معنادار نسبت به کاغذهای اولیه بهبود یافته بودند. در مقایسه رفتار کششی کامپوزیت و نانوکامپوزیت ساخته شده، برخلاف مقاومت کششی

## منابع

1. Alamri, H., Low, I.M., and Allothman, Z. 2012. Mechanical, thermal, and microstructural characteristics of cellulose fiber reinforced epoxy/organoclay nanocomposites. *Composites Part B: Engineering*. 43: 7. 2762-2771.
2. Chia, C.H., Zakaria, S., Nguyen, K.L., and Abdullah, M. 2008. Utilization of unbleached kenaf fibers for the preparation of magnetic paper. *Industrial Crops and Products*. 28: 3. 333-339.
3. Gao, D., Ma, J., Li, Z.H., and Liu, J. 2014. Preparation and characterization of a new white magnetic paper. *Materials Letters*. 137: 487-490.
4. Lu, Y., Zhang, L., and Xiao, P. 2004. Structure, properties and biodegradability of water resistant regenerated cellulose films coated with polyurethane/benzyl konjac glucomannan semi-IPN coating. *Polymer Degradation and Stability*. 86: 1. 51-57.
5. Marchessault, R.H., Rioux, P., and Raymond, L. 1992. Magnetic cellulose fibres and paper: preparation, processing and properties. *Polymer*. 33: 19. 4024-4028.
6. Mashkour, M., Kimura, T., Kimura, F., Mashkour, M., and Tajvidi, M. 2014. One-dimensional core-shell cellulose-akaganeite hybrid nanocrystals: synthesis, characterization, and magnetic field induced self-assembly. *RSC Advances*, 4: 94. 52542-52549.
7. Mashkour, M., Moradabadi, Z., and Khazaeian, A. 2017. Physical and tensile properties of epoxy laminated magnetic bacterial cellulose nanocomposite films. *J. of Applied Polymer Science*. 134: 30. 45118.

8. Mashkour, M., Tajvidi, M., Kimura, F., Yousefi, H., and Kimura, T. 2014. Strong highly anisotropic magnetocellulose nanocomposite films made by chemical peeling and in situ welding at the interface using an ionic liquid. *ACS Applied Materials and Interfaces*. 6: 11. 8165-8172.
9. Mashkour, M., Tajvidi, M., Kimura, T., Kimura, F., and Ebrahimi, Gh. 2011. Fabricating unidirectional magnetic papers using permanent magnets to align magnetic nanoparticle covered natural cellulose fibers. *BioResources*. 6: 4. 4731-4738.
10. Olsson, R.T., Samir, M.A., Salazar-Alvarez, G., Belova, L., Ström, V., Berglund, L.A., Ikkala, O., Nogues, J., and Gedde, U.W. 2010. Making flexible magnetic aerogels and stiff magnetic nanopaper using cellulose nanofibrils as templates. *Nature Nanotechnology*. 5: 8. 584-588.
11. Rong, M.Z., Zhang, M.Q., Liu, Y., Yang, G.Ch., and Zeng, H.M. 2001. The effect of fiber treatment on the mechanical properties of unidirectional sisal-reinforced epoxy composites. *Composites Science and Technology*. 61: 10. 1437-1447.
12. Small, A.C. and Johnston, J.H. 2009. Novel hybrid materials of magnetic nanoparticles and cellulose fibers. *J. of Colloid and Interface Science*. 331: 1. 122-126.
13. Zakaria, S., Ong, B.H., and van de Ven, T.G.M. 2004. Lumen loading magnetic paper II: mechanism and kinetics. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. 251: 1. 31-36.
14. Zhou, J., Li, R., Liu, Sh., Li, Q., Zhang, L., Zhang, L., and Guan, J. 2009. Structure and magnetic properties of regenerated cellulose/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanocomposite films. *J. of Applied Polymer Science*. 111: 5. 2477-2484.



## **Fabrication and evaluation of physical and mechanical properties of magnetic-cellulose paper/epoxy resin nanocomposites**

**A. Goldoust Jooibari<sup>1</sup>, \*M. Mashkour<sup>2</sup>, T. Tabarsa<sup>3</sup> and H. Yousefi<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>M.Sc. Student of Wood Composite Products, Gorgan University of Agricultural Sciences and Natural Resources, Gorgan, Iran,

<sup>2</sup>Associate Prof., Laboratory of Sustainable Nanomaterials, Dept. of Wood Technology and Engineering, Gorgan University of Agricultural Sciences and Natural Resources, Gorgan, Iran,

<sup>3</sup>Professor, Dept. of Wood Technology and Engineering, Gorgan University of Agricultural Sciences and Natural Resources, Gorgan, Iran

Received: 02.03.2020; Accepted: 05.30.2020

### **Abstract**

**Background and Objectives:** Despite the high potential applications of superparamagnetic cellulose fibers and papers, the hydrophilicity of cellulose and its resulting dimensional instability, as well as the significant loss of tensile strength due to the presence of magnetic nanoparticles on the fibers' surface, have limited the use of these functional materials. This study aimed to investigate the possibility of impregnating cellulose-superparamagnetic papers with epoxy resin and improving their physicochemical behavior by converting them to nanocomposites.

**Materials and Methods:** In this research, superparamagnetic cellulose fibers were prepared by synthesizing of magnetite nanoparticles ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) on the softwood cellulose fibers. First, suspension of cellulose fibers was prepared in distilled water at a temperature of 65 °C, followed by the addition of iron chlorides II and III at a ratio of 2:1. Treated fibers were removed from the solution and immediately transferred into 1 M sodium hydroxide solution at 60 °C after dewatering to complete magnetic nanoparticle synthesis. After washing, the magnetic cellulose fibers were converted to magnetic cellulose paper (MCPap) with a grammage of 60 g/m<sup>2</sup>. For comparison, non-magnetic paper (CPap) with the same grammage was fabricated. The papers were impregnated with a two-component epoxy resin, and cellulose paper/epoxy resin (EP-CPap) composites and magnetic-cellulose paper/epoxy resin (EP-MCPap) nanocomposites were made. Microscopic observation, X-ray diffraction, magnetometry, ash determination, static tensile testing, water absorption, and thickness swelling were performed on the specimens, and the results were assessed.

**Results:** The successful in situ synthesis of spherical magnetic nanoparticles on the surface of cellulose fibers was confirmed by FESEM micrographs. The results of the XRD and VSM tests showed a successful synthesis of magnetite nanocrystals with a diameter of about 7 nm and a superparamagnetic behavior. The weight ratio of magnetic nanoparticles in MCPap paper was approximately 14.5 percent. The results of the static tensile test confirmed the significant improvement in the tensile behavior of EP-CPap and EP-MCPap over the original papers. Also, the maximum tensile strength of EP-MCPap did not show a significant difference with EP-CPap, while the tensile strain and energy at the break of EP-MCPap were significantly higher and the modulus of elasticity was significantly lower than EP-CPap. In EP-CPap samples, the maximum water absorption and thickness swelling and the speed to reach the peak assessed values were higher than those in EP-MCPap specimens.

---

\*Corresponding author: mahdimashkour@gmail.com

**Conclusion:** Microscopic analysis of the paper structure of CPap and MCPap indicated enhanced fiber-fiber interface quality in CPap paper; this observation was attributed to the influence of the presence of magnetic nanoparticles on MCPap paper fibers and the disturbance in the development of the interface between adjacent cellulosic fibers. Despite the considerable advantage of the tensile strength of CPap paper over MCPap paper, probably due to the limited availability of epoxy resin on all-fiber surfaces in CPap paper, the tensile strength of EP-MCPap and EP-CPap nanocomposite was not significantly different. It appears that despite the negative effect of the presence of magnetic nanoparticles on the mechanical properties of MCPap paper due to the less dense texture of the paper, the epoxy resin's permeability is improved and, therefore, the epoxy nanocomposites' tensile behavior and water absorption and thickness swelling are improved. The results of this study confirmed that the impregnation of the magnetic papers with epoxy resin significantly improves the physicommechanical behavior and, consequently, the development of their potential applications.

**Keywords:** Epoxy resin, In-situ synthesis, Magnetic paper, Nanocomposite, Physical and mechanical properties