

TEHNOLOŠKO-METALURŠKI FAKULTET

UNIVERZITET U BEOGRADU

35/130
(Broj zahteva)
30.09.2013.
(datum)

VEĆE NAUČNIH OBLASTI TEHNIČKIH NAUKA

(naziv veća naučne oblasti kome se zahtev upućuje)

Beograd, Studentski trg br. 1

ZAHTEV

za davanje saglasnosti na referat o urađenoj doktorskoj disertaciji

Molimo da, shodno članu 46. st.5 Statuta Univerzitetu u Beogradu ("Glasnik Univerziteta" broj 131/06), date saglasnost na referat o urađenoj doktorskoj disertaciji kandidata

Mr NOZHAT MOFTAH EL BUAISHI
(ime, ime jednog od roditelja i prezime)

KANDIDAT: **Mr NOZHAT MOFTAH EL BUAISHI** prijavila je doktorsku disertaciju pod nazivom:

„PROUČAVANJE SINTERABILNOSTI KORDIJERITNIH PRAHOVA SINTETIZOVANIH RAZLIČITIM SOL-GEL POSTUPCIMA”

Iz naučne oblasti: **HEMIJA I HEMIJSKA TEHNOLOGIJA**

Univerzitet je dana **26.03.2012. godine**, svojim aktom **02 broj 06-17793/22-12**, dao saglasnost na predlog teme doktorske disertacije koja je glasila:

„PROUČAVANJE SINTERABILNOSTI KORDIJERITNIH PRAHOVA SINTETIZOVANIH RAZLIČITIM SOL-GEL POSTUPCIMA“

Komisija za ocenu i odbranu doktorske disertacije kandidata:

Mr NOZHAT MOFTAH EL BUAISHI
(ime, ime jednog od roditelja i prezime)

obrazovana je na sednici održanoj **28.03.2013.** odlukom fakulteta pod br. **35/103.** u sastavu:

Ime i prezime člana komisije	Zvanje	Naučna oblast
1. Dr Rada Petrović	Redovni profesor	Inženjerstvo neorganskih hemijskih proizvoda
2. Dr Đorđe Janačković	Redovni profesor	Inženjerstvo neorganskih hemijskih proizvoda
3. Dr Snežana Grujić	Vanredni profesor	Inženjerstvo neorganskih hemijskih proizvoda
4. Dr Đorđe Veljović	Naučni saradnik	Tehničko-tehnološke nauke-Nauka o materijalima

Nastavno-naučno veće fakulteta prihvatilo je izveštaj Komisije za ocenu i odbranu doktorske disertacije na sednici održanoj dana **25.04. 2013. godine.**

DEKAN FAKULTETA

Prof. dr Đorđe Janačković

Prilog:

1. Doktorska disertacija
2. Izveštaj Komisije sa predlogom
3. Akt Nastavno-naučnog veća Fakulteta o usvajanju izveštaja

Na osnovu čl. 128. Zakona o visokom obrazovanju i čl. 129. Statuta TMF, na sednici Nastavno-naučnog veća Tehnološko-metalurškog fakulteta od 25.04.2013. godine, doneta je

O D L U K A

o prihvatanju Referata o oceni doktorske disertacije

Prihvata se Referat Komisije u sastavu: dr Rada Petrović, redovni profesor Tehnološko-metalurškog fakulteta, dr Đorđe Janačković, redovni profesor Tehnološko-metalurškog fakulteta, dr Snežana Grujić, vanredni profesor Tehnološko-metalurškog fakulteta, dr Đorđe Veljović, naučni saradnik Inovacionog centra Tehnološko-metalurškog fakulteta, o pregledu i oceni urađene doktorske disertacije pod nazivom: „**PROUČAVANJE SINTERABILNOSTI KORDIJERITNIH PRAHOVA SINTETIZOVANIH RAZLIČITIM SOL-GEL POSTUPCIMA**“ koju je podnela **mr NOZHAT MOFTAH EL BUAISHI**, i upućuje se na saglasnost Veću naučnih oblasti tehničkih nauka Univerziteta u Beogradu.

Veće naučnih oblasti tehničkih nauka Univerziteta u Beogradu dalo je saglasnost na predlog teme doktorske disertacije **mr NOZHAT MOFTAH EL BUAISHI**, pod nazivom „**PROUČAVANJE SINTERABILNOSTI KORDIJERITNIH PRAHOVA SINTETIZOVANIH RAZLIČITIM SOL-GEL POSTUPCIMA**“ Odlukom 02 broj: 06-17793/22-12 od 26.03.2012. godine.

Rad u vrhunskom međunarodnom časopisu (M21)

1. **El-Buaishi, N. M.**, Jankovic-Castvan, I., Jokic, B., Veljović, Dj., Janackovic, Dj., Petrovic, R.: - Crystallization behavior and sintering of cordierite synthesized by an aqueous sol-gel route, *Ceramic International*, vol. 38, pp. 1835-1841, 2012 (**IF (2011) = 1,751**) (ISSN 0272-8842).
2. **El-Buaishi, N. M.**, Veljović, Dj., Jokic, B., Radovanović, Ž., Steins, I., Janačković, Dj., Petrović, R.: - Conventional and spark-plasma sintering of cordierite powders synthesized by sol-gel methods, *Ceramic International*, vol. 39, pp. 5845-5854, 2013 (**IF (2011) = 1,751**) (ISSN 0272-8842).

Odluku dostaviti: Veću naučnih oblasti tehničkih nauka Univerziteta, mentoru, Službi za nastavno-studentske poslove, Biblioteci i Arhivi fakulteta.

D E K A N

Prof. dr Đorđe Janačković

**NASTAVNO-NAUČNOM VEĆU
TEHNOLOŠKO-METALURŠKOG FAKULTETA
UNIVERZITETA U BEOGRADU**

Na sednici Nastavno-naučnog veća Tehnološko-metalurškog fakulteta Univerziteta u Beogradu održanoj 28. 03. 2013. godine izabrani smo u Komisiju za ocenu i odbranu doktorske disertacije kandidata mr Nozhat Moftah El Buaishi, pod nazivom:

Proučavanje sinterabilnosti kordijeritnih prahova sintetizovanih različitim sol-gel postupcima

Komisija je pregledala doktorsku disertaciju i Nastavno-naučnom veću Tehnološko-metalurškog fakulteta podnosi sledeći

**IZVEŠTAJ
o urađenoj doktorskoj disertaciji**

1. UVOD

1.1. Hronologija odobravanja i izrade disertacije

- 15. 12. 2011. – Kandidatkinja mr Nozhat Moftah El Buaishi, prijavila je temu doktorske disertacije pod nazivom: „Proučavanje sinterabilnosti kordijeritnih prahova sintetizovanih različitim sol-gel postupcima“, a Nastavno naučno veće Tehnološko-metalurškog fakulteta u Beogradu usvojilo je sastav Komisije za ocenu naučne zasnovanosti predložene teme.

- 09. 02. 2012. – Na sednici Nastavno-naučnog veća Tehnološko-metalurškog fakulteta doneta je Odluka o odobravanju predloga teme doktorske disertacija mr Nozhat Moftah El Buaishi, pod nazivom: „Proučavanje sinterabilnosti kordijeritnih prahova sintetizovanih različitim sol-gel postupcima“, a za mentora ove doktorske disertacije imenovana je dr Rada Petrović, vanredni profesor TMF-a.

- 26. 02. 2012. – Na sednici Veća naučnih oblasti tehničkih nauka Univerziteta u Beogradu data je saglasnost na predlog teme doktorske disertacije mr Nozhat Moftah El Buaishi, pod nazivom: „Proučavanje sinterabilnosti kordijeritnih prahova sintetizovanih različitim sol-gel postupcima“.

- 28. 03. 2013. – Na sednici Nastavno-naučnog veća Tehnološko-metalurškog fakulteta doneta je Odluka o imenovanju članova Komisije za ocenu i odbranu doktorske disertacije mr Nozhat Moftah El Buaishi, pod nazivom: „Proučavanje sinterabilnosti kordijeritnih prahova sintetizovanih različitim sol-gel postupcima“.

1.2. Naučna oblast disertacije

Istraživanja u okviru ove doktorske disertacije pripadaju naučnoj oblasti Hemija i Hemijska tehnologija (uža oblast Inženjerstvo materijala), za koju je matičan Tehnološko-metalurški fakultet Univerziteta u Beogradu.

Mentor dr Rada Petrović, red. prof. TMF-a, je do sada iz ove oblasti publikovala više od 45 radova u časopisima koji su na SCI listi, rukovodila izradom četiri odbranjene doktorske disertacije, dve magistarske teze i bila član devet komisija odbranijenih doktorskih disertacija, što govori o kompetentnosti da rukovodi izradom ove doktorske disertacije.

1.3. Biografski podaci o kandidatu

Mr Nozhat Moftah El Buaishi je rođena 26. 12. 1966. godine u Tripoliju u Libiji. Diplomirala je 1991. godine na Univerzitetu Al-Fateh (University of Al-Fateh) u Tripoliju, na Fakultetu za umetnost i medije (Faculty of Arts & Inform), na Katedri za keramiku i staklo. Na istom fakultetu je držala vežbe iz predmeta „Hemija keramike“ i „Svojstva keramike i sirovine“ u periodu od 1992. do 2000. godine. U srednjoj školi u Tripoliju je predavala „Opštu hemiju“ od 1992. do 1999. godine. Magistarsku tezu na temu „Uticaj veličine čestica na svojstva staklo-keramičkih pločica“ je odbranila 2005. godine na Univerzitetu kulture u Istanbulu (Istanbul Cultur University – Institute of Science and Engineering). Diploma koju je Nozhat Moftah El Buaishi stekla završetkom ovih magistarskih studija priznata je Odlukom Univerziteta u Beogradu od 26. 05. 2010. godine kao diploma magistarskih studija sa zvanjem magistar tehničkih nauka iz oblasti građevinarstva. Nakon magistriranja, u periodu od 2005. do 2009. godine, radila je kao asistent na Univerzitetu Al-Fateh, na Fakultetu za umetnost i medije, na Katedri za staklo i keramiku. U toku izrade doktorske disertacije na Katedri za neorgansku hemijsku tehnologiju Tehnološko-metalurškog fakulteta Univerziteta u Beogradu objavila je dva rada u vrhunskom časopisu međunarodnog značaja (M21), jedan rad je saopšten na naučnom skupu međunarodnog značaja koji je štampan u izvodu (M34) i jedan rad je saopšten na skupu nacionalnog značaja i štampan u celini (M63).

2. OPIS DISERTACIJE

2.1. Sadržaj disertacije

Doktorska disertacija mr Nozhat Moftah El Buaishi napisana je na 103 strane, u okviru kojih se nalazi 10 poglavlja, sa ukupno 57 slika, 10 tabela i 112 literaturnih navoda. Doktorska disertacija sadrži: Uvod, Teorijski deo sa pet poglavlja, Eksperimentalnu proceduru, Rezultate i diskusiju, Zaključak i Literaturu. Na početku disertacije dati su izvodi na srpskom i engleskom jeziku.

2.2. Kratak prikaz pojedinačnih poglavlja

U Uvodu su obrazloženi predmet i ciljevi istraživanja u okviru doktorske disertacije. Istaknuti su značaj i svojstva kordijeritne keramike, kao i teškoće dobijanja gustih kordijeritnih materijala zbog uskog intervala sinterovanja u blizini tačke topljenja kordijerita ($1460\text{ }^{\circ}\text{C}$). Ukazano je na potrebu sinteze kordijeritnih prahova velike sinterabilnosti i obrazložena primena različitih sol-gel postupaka sinteze u cilju sniženja temperature sinterovanja kordijeritne keramike. Takođe, istaknut je i značaj i mogućnosti primene spark-plazma sinterovanja za dobijanje gustih materijala na nižim temperaturama i za kraće vreme u odnosu na konvencionalne postupke sinterovanja. Navedeno je koji parametri procesa sinterovanja su varirani tokom ispitivanja u cilju definisanja optimalnih parametara za dobijanje guste kordijeritne keramike.

U Teorijskom delu disertacije dat je literaturni pregled predmetne oblasti, izložen kroz pet poglavlja: Kordijerit, Sinteza prahova, Kompaktiranje prahova, Sinterovanje, Sinterovanje kordijeritnih prahova – analiza literaturnih podataka.

U prvom poglavlju teorijskog dela analizirana su svojstva i primena kordijerita ($2\text{MgO}\cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 5\text{SiO}_2$), kao i struktura polimorfnih oblika kordijerita. Drugo poglavlje je posvećeno postupcima sinteze prahova, pri čemu su istaknute željene karakteristike prahova za dobijanje guste keramike. Analizirane su prednosti i nedostaci različitih postupaka sinteze, a posebno su razmotreni polimerni i koloidni sol-gel postupci i postupci mlevenja, koji su primenjivani u eksperimentalnom radu. Uniaksijalno i izostatsko presovanje, kao postupci kompaktiranja prahova, prikazani su u trećem poglavlju, pri čemu je posebno analiziran uticaj karakteristika praha na kvalitet ispreska. U četvrtom poglavlju su analizirani procesi sinterovanja. Prikazan je uticaj različitih parametara procesa na osobine sinterovanog materijala, navedene su faze sinterovanja, analizirani su mehanizmi sinterovanja u čvrstoj fazi i u prisustvu tečne faze, kao i rast zrna tokom sinterovanja. Mehanizam spark-plazma sinterovanja je detaljno analiziran u cilju objašnjenja svojstava kordijeritnih materijala dobijenih ovim postupkom u poređenju sa materijalima koji su dobijeni konvencionalnim sinterovanjem. Pregled radova o sinterovanju kordijeritnih prahova dat je u šestom poglavlju, pri čemu je obraćana pažnja na: postupak pripreme prahova koji su korišćeni u ispitivanju, da li su i na kojoj temperaturi prahovi kalcinirani, da li su i pri kojim uslovima prahovi mleveni, na koji način su prahovi kompaktirani i pri kojim uslovima su kompakti sinterovani. Na osnovu ovakve analize literaturnih podataka, utvrđeno je da do sada nije ispitivana sinterabilnost prahova koji se dobijaju sol-gel postupkom polazeći od silicijumove kiseline, kao i da spark-plazma sinterovanje nije primenjivano za dobijanje kordijeritne keramike.

U poglavlju Eksperimentalna procedura dat je opis:

- postupaka sinteze gelova kordijeritnog sastava alkoksidnim sol-gel postupkom (G_{alkoxi}), koloidnim sol-gel postupkom polazeći od sola SiO_2 (G_{sol}) i sol-gel postupkom polazeći od silicijumove kiseline (G_{acid}),
- metoda i tehnika korišćenih za karakterizaciju gela G_{acid} i prahova dobijenih od gela G_{acid} ;
- postupka ispitivanja kinetike kristalizacije kordijerita iz gela G_{acid} ,
- postupka pripreme prahova za sinterovanje kalcinacijom gelova na temperaturi na kojoj dolazi do intenzivnog skupljanja bez kristalizacije komponente koja sadrži SiO_2 ili na temperaturi na kojoj se formira α -kordijerit, uz naknadno mlevenje u toku 0,5 h ili 3 h;

- postupka kompaktiranja prahova i sinterovanja na različitim temperaturama, konvencionalnim postupkom i spark-plazma sinterovanjem;
- metoda i tehnika korišćenih za karakterizaciju kordijeritnih prahova i sinterovanih materijala.

Poglavlje Rezultati i diskusija je podeljeno u dva dela: u jednom su prikazani i diskutovani rezultati karakterizacije i ispitivanja ponašanja pri zagrevanju gela G_{acid} , a u drugom rezultati ispitivanja sinterabilnosti prahova dobijenih kalcinacijom gelova G_{alkoxi} , G_{sol} i G_{acid} . Polazeći od silicijumove kiseline i soli aluminijuma i magnezijuma, dobijen je hemijski homogeni kordijeritni gel, velike poroznosti. Hemijska homogenost gela je potvrđena kristalizacijom μ -kordijerita na temperaturama oko 900 °C. U temperaturnom intervalu 800–850 °C došlo je do viskoznog sinterovanja bez kristalizacije μ -kordijerita. Na osnovu rezultata DTA, XRD i FTIR analiza pokazano je da se transformacija $\mu \rightarrow \alpha$ -kordijerit odigrava u širokom temperaturnom intervalu i da se α -kordijerit pojavljuje na oko 1200 °C. Kalcinacijom u toku 2 h na 1300 °C došlo je do potpune transformacije $\mu \rightarrow \alpha$ -kordijerit.

Diferencijalno termijskom analizom gela G_{acid} pri različitim brzinama zagrevanja i primenom jednačine Ozava određena je vrednost Avramijevog parametra za kristalizaciju μ -kordijerita, koja je bliska 1. Dobijena vrednost Avramijevog parametra ukazuje da μ -kordijerit kristališe na granici faza, pri konstantnom broju nukleusa i da je rast kristala jednodimenzion ili pak da dolazi do površinske nukleacije. Na osnovu toga je zaključeno da se viskozno sinterovanje odigrava u primarnim česticama gela, što dovodi do skupljanja, nakon čega se nukleacija odigrava na površini ili međupovršini čestica. Zbog površinske kristalizacije, prosečna energija aktivacije kristalizacije μ -kordijerita (382,0 kJ/mol), određena primenom Kisindžerove jednačine, je niža nego u slučajevima u kojima dolazi do zapreminske nukleacije.

Na osnovu dobijenih rezultata ispitivanja ponašanja gela G_{acid} pri zagrevanju, prahovi za ispitivanje sinterabilnosti su dobijeni kalcinacijom ovog gela na 850 °C (intenzivno slupljanje bez kristalizacije komponente koja sadrži SiO_2 , odnosno μ -kordijerita) i na 1300 °C (formiranje α -kordijerita). Na osnovu literaturnih podataka, gel G_{alkoxi} je kalcinisan na istim temperaturama, a gel G_{sol} na 950 °C i 1300 °C. Kalcinisani prahovi su mleveni u toku 0,5 h i 3 h, čime je dobijeno dvanaest prahova za ispitivanje uticaja: načina sinteze gela, temperature kalcinacije gela, dužine trajanja mlevenja klacinisanih prahova, temperature sinterovanja i vrste sinterovanja na mikrostrukturu i mehanička svojstva kordijeritne keramike.

Produženo vreme mlevenja kalcinanih gelova u svim slučajevima je dovelo do smanjenja veličine čestica. Nakon 3 h mlevenja, čestice svih prahova su bile približno sferne, bimodalne raspodele veličina, sa maksimumima na oko 1 μm i 10 μm . Step denzifikacije kordijeritnih materijala u svim slučajevima je povećan sa smanjenjem veličine čestica praha: mnogo gušći materijali su dobijeni korišćenjem prahova koji su mleveni 3 h nego u slučaju mlevenja 0,5 h.

Sinterabilnost prahova koji su dobijeni kalcinacijom na 1300 °C je bila bolja u svim slučajevima od sinterabilnosti prahova koji su dobijeni kalcinacijom na temperaturama na kojima je dolazilo do intenzivnog skupljanja pre kristalizacije komponente koja sadrži SiO_2 . Očigledno je da kristalizacija nakon denzifikacije uslovljava naprezanja koja uzrokuju manje gustine i lošije mehaničke karakteristike dobijenih materijala u poređenju sa onim koji su dobijeni sinterovanjem kristalisanih prahova. Povišenje temperature sinterovanja od 1400 °C

do 1450 °C nije imalo uticaja na sinterabilnost prahova dobijenih mlevenjem u toku 0,5 h, zbog veoma krupnih čestica prahova. Za prahove koji su dobijeni mlevenjem u toku 3 h, optimalna temperatura sinterovanja je bila 1430 °C za prahove dobijene od G_{acid} i 1400 °C za prahove dobijene od G_{sol} . U odnosu na prahove dobijene od silicijumove kiseline i koloidnog SiO_2 , prahovi dobijeni alkoksidnim postupkom su imali znatno lošiju sinterabilnost, bez obzira na slične veličine i raspodele veličina čestica prahova i na visoke temperature sinterovanja. Najbolja mehanička svojstva materijala dobijenih konvencionalnim sinterovanjem su postignuta sinterovanjem na 1400 °C praha koji je dobijen kalcinacijom na 1300 °C koloidnog gela i sinterovanjem na 1430 °C praha koji je dobijen kalcinacijom na 1300 °C gela dobijenog polazeći od silicijumove kiseline. Najbolji materijali su imali tvrdoću oko 7,5 do 8 GPa, dok je žilavost (K_{IC}) bila od 3,7 do 3,8 MPa m^{1/2}.

Sinterabilnost prahova dobijenih alkoksidnim postupkom je bila značajno poboljšana spark-plazma sinterovanjem na nižim temperaturama i za značajno kraće vreme (1350 °C, 7 minuta) nego u slučaju konvencionalnog sinterovanja (1450 °C, 2 časa). Gustine spark-plazma sinterovanih materijala su bile bliske teorijskoj gustini kordijerita i mehanička svojstva su bila značajno bolja od svojstava konvencionalno dobijenih materijala (tvrdoća oko 8,5 GPa i K_{IC} oko 4,1 MPa m^{1/2}). Pretpostavljeno je da je poboljšana sinterabilnost alkoksidnih prahova tokom spark-plazma sinterovanja rezultat pojave tečne faze na površini čestica zahvaljujući primeni visoke struje, za razliku od konvencionalnog sinterovanja gde se tečna faza nije javljala zahvaljujući velikoj čistoći prahova i odsustva aditiva sinterovanja. Bolja sinterabilnost tokom konvencionalnog sinterovanja prahova koji su dobijeni od sola SiO_2 i silicijumove kiseline objašnjena je prisustvom jona natrijuma u solu i kiselini, koji očigledno imaju ulogu aditiva sinterovanja.

U Zaključku disertacije sumirani su najznačajniji zaključci proizašli iz rada na ovoj disertaciji.

U delu Literatura citirane su reference korišćene tokom izrade doktorske disertacije.

3. OCENA DISERTACIJE

3.1. Savremenost i originalnost

Kordijerit ima veliki značaj u nauci o materijalima i široku primenu u industriji zahvaljujući malom koeficijentu toplotnog širenja, maloj dielektričnoj konstanti, velikoj specifičnoj otpornosti i relativno velikoj vatrostalnosti. Međutim, gustu kordijeritnu keramiku je veoma teško dobiti konvencionalnim postupcima sinteze, zbog veoma uskog intervala sinterovanja u blizini tačke topljenja kordijerita. Pokušaji da se problem uskog intervala sinterovanja reši aditivima omogućili su snižavanje temperature kristalizacije kordijerita i povećanja gustine gotovog proizvoda, ali su doveli do pogoršanja željenih osobina, odnosno do povećanja koeficijenta toplotnog širenja i dielektrične konstante. Zbog toga su poslednjih godina istraživanja usmerena na odgovarajuću pripremu polaznih prahova, jer odlučujući uticaj na svojstva sinterovanog keramičkog proizvoda imaju karakteristike polaznog praha. Za sintezu kordijerita su u velikoj meri primenjivani sol-gel postupci, polazeći od različitih prekursora, čime su dobijani monofazni polimerni ili trofazni koloidni gelovi. Pokazano je da se kalcinacijom gelova dobijenih sol-gel postupcima može dobiti kordijerit na temperaturama koje su znatno niže od temperatura koje se primenjuju u konvencionalnim postupcima,

odnosno reakcijama u čvrstoj fazi. Međutim, da bi se dobila gusta kordijeritna keramika, neophodno je dobiti fine kordijeritne prahove, pa je neophodna faza mlevenja nakon kalcinacije gelova. U literaturi postoje različita mišljenja o tome na kojoj temperaturi treba kalcinirati kordijeritne gelove, odnosno da li je bolje sinterovati dobro kristalisane prahove α -kordijerita ili amorfne prahove kordijeritnog sastava u kojima je došlo do denzifikacije mehanizmom viskoznog toka, ali nije kristalisala faza koja sadrži SiO_2 . Pokazano je da u slučaju koloidnog sol-gel postupka, nakon denzifikacije trofaznih gelova viskoznim tokom kristališe kristobalit, a u slučaju monofaznih gelova koji se dobijaju alkoksidnim postupkom kristališe μ -kordijerit, što ukazuje na hemijsku homogenost alkoksidnih gelova. Međutim, veoma malo je podataka o sinterovanju prahova dobijenih sol-gel postupcima, a praktično nema sistematskih ispitivanja sinterabilnosti prahova dobijenih različitim sol-gel postupcima. Takođe, u literaturi postoji veoma malo podataka o faznim transformacijama pri toplotnoj obradi kordijeritnih gelova koji se dobijaju polazeći od silicijumove kiseline, a time i o sinterabilnosti prahova koji se mogu dobiti ovim postupkom, koji je potencijalno od interesa za praktičnu primenu zbog jeftinih polaznih sirovina u poređenju sa npr. alkoksidnim postupkom. Zbog toga su u ovoj doktorskoj disertaciji detaljno proučene vrste i kinetika faznih transformacija pri toplotnoj obradi gelova dobijenih od silicijumove kiseline, a sinterabilnost kordijeritnih prahova dobijenih ovim postupkom je ispitana i upoređena sa sinterabilnošću prahova dobijenih koloidnim i alkoksidnim postupcima. U sva tri slučaja, prahovi za ispitivanje sinterabilnosti su dobijeni kalcinacijom gelova i na temperaturi formiranja α -kordijerita i na temperaturi na kojoj dolazi do maksimalne denzifikacije, bez kristalizacije faze koja sadrži SiO_2 . Kalcinirani gelovi su mleveni u toku različitih vremenskih intervala i sinterovani na različitim temperaturama, konvencionalnim i spark-plazma sinterovanjem. Na taj način, sprovedeno je sistematsko ispitivanje zavisnosti mikrostrukturnih karakteristika i mehaničkih svojstava sinterovanih materijala od načina sinteze gela, temperature kalcinacije gela, dužine trajanja mlevenja kalciniranih prahova, temperature sinterovanja i vrste sinterovanja. Na osnovu dobijenih rezultata utvrđeni su optimalni parametri procesa dobijanja guste kordijeritne keramike primenom sol-gel postupaka sinteze kordijeritnih prahova.

3.2. Osvrt na referentnu i korišćenu literaturu

U toku izrade doktorske disertacije kandidatkinja je detaljno analizirala literaturu iz predmetne oblasti, a u literaturnom pregledu je navedeno 112 referenci. Najveći broj citiranih referenci čine radovi iz međunarodnih časopisa sa tematikom značajnom za izradu doktorske disertacije. Analizirani su radovi koji se odnose na sintezu kordijerita različitim sol-gel postupcima, a posebno radovi koji se tiču uslova procesa sinterovanja kordijeritnih prahova i ispitivanja svojstava sinterovanih materijala. S obzirom da spark-plazma sinterovanje do sada nije primenjivano za sinterovanje kordijeritnih materijala, posebna pažnja je posvećena teorijskim aspektima ove vrste sinterovanja u cilju definisanja uslova dobijanja kordijeritnih materijala ovom tehnikom. Detaljna analiza literaturnih podataka je omogućila definisanje plana istraživanja i objašnjenje rezultata dobijenih u toku izrade doktorske disertacije. U okviru literaturnih navoda nalaze se i reference kandidata mr Nozhat Moftah El Buaishi, proistekle iz ove disertacije, koje su objavljene u međunarodnom časopisu.

3.3. Opis i adekvatnost primenjenih naučnih metoda

Kordijeritni prahovi su sintetizovani primenom tri sol-gel postupka da bi se obezbedilo formiranje kordijerita na temperaturama kalcinacije nižim od onih koje se primenjuju u konvencionalnim postupcima. Pošto tokom kalcinacije dolazi do smanjenja specifične površine i ukupnjavanja čestica, bilo je neophodno primeniti mlevenje u planetarnom mlinu, u toku različitih vremenskih intervala, da bi se dobili prahovi sa što manjim česticama i što užom raspodelom veličina čestica, koje bi se bolje pakovale tokom presovanja, dajući što manje pore, uniformne veličine, čime bi se obezbedilo dobijanje gustih sinterovanih materijala. Sinterovanje je izvedeno konvencionalnim postupkom, na različitim temperaturama, ali i primenom nove tehnike, spark-plazma sinterovanjem.

Na osnovu rezultata ispitivanja skenirajućom elektronskom mikroskopijom (SEM), transmisijom elektronskom mikroskopijom (TEM), rendgenskom difrakcionom analizom (XRD), infracrvenom spektroskopskom analizom (FT IR), diferencijalno-termijskom i termogravimetrijskom analizom (DTA i TGA) i termomikroskopskom metodom u potpunosti su objašnjene promene koje se odigravaju pri toplotnoj obradi gela G_{acid} . Diferencijalno-termijskom analizom u neizotermnim uslovima, pri različitim brzinama zagrevanja, definisana je kinetika procesa kristalizacije kordijerita iz gela G_{acid} .

Prahovi kordijerita koji su korišćeni za ispitivanje sinterovanja su okarakterisani određivanjem morfologije i raspodele veličina čestica skenirajućom elektronskom mikroskopijom i metodom laserske difrakcije. Da bi se dobile pouzdane informacije o mikrostrukturi sinterovanih materijala, skenirajućom elektronskom mikroskopijom su ispitivani sinterovani materijali pri različitim uvećanjima, na prelomu i nakon poliranja i nagrizanja odgovarajućim postupkom. U cilju određivanja eventualnog prisustva staklaste faze u sinterovanim uzorcima, ispitivan je i fazni sastav sinterovanih materijala rendgenskom difrakcionom analizom. Kvalitet sinterovanih kordijeritnih materijala dobijenih pri različitim uslovima je upoređivan i na osnovu vrednosti gustine, koja je određivana Arhimedovim postupkom, kao i na osnovu mehaničkih karakteristika, tvrdoće i žilavosti, koje su određivane metodom mikroindentacije na poliranim uzorcima.

3.4. Primenljivosti ostvarenih rezultata

Rezultati ostvareni u ovoj doktorskoj disertaciji daju veliki doprinos povećanju nivoa znanja u oblasti dobijanja guste kordijeritne keramike sinterovanjem kordijeritnih prahova. Dobijeni rezultati pokazuju da se hemijski homogeni, čisti kordijeritni prahovi, kao što su prahovi dobijeni alkoksidnim postupkom, veoma teško sinteruju konvencionalnim postupkom čak i na temperaturama u neposrednoj blizini tačke topljenja. Činjenica da se ovi prahovi veoma dobro sinteruju spark-plazma sinterovanjem usled pojave tečne faze na površini čestica zahvaljujući primeni visoke struje ukazuje da je za bolje sinterovanje konvencionalnim postupkom ipak neophodan neki aditiv koji bi obezbedio nastajanje male količine tečne faze na površini čestica. Mnogo bolji rezultati su dobijeni u slučaju prahova koji su dobijeni jeftinijim koloidnim postupkom i sol-gel postupkom u kome je korišćena silicijumova kiselina, verovatno zahvaljujući prisustvu jona natrijuma u solu i kiselinu, koji imaju ulogu aditiva sinterovanja. Rezultati ovih ispitivanja mogu biti osnova za dobijanje guste

kordijeritne keramike relativno jeftinim postupcima i dalje proučavanje mogućnosti primene tako dobijenih materijala u elektronici i drugim oblastima.

3.5. Ocena dostignutih sposobnosti kandidata za samostalni naučni rad

Kandidatkinja mr Nozhat Moftah El Buaishi je tokom izrade doktorske disertacije ispoljila veliku stručnost u pripremi i realizaciji eksperimenata, korišćenju različitih tehnika karakterizacije materijala i analizi rezultata. Kandidat poseduje sve kvalitete koji su neophodni za samostalni naučni rad.

4. OSTVARENI NAUČNI DOPRINOS

4.1. Prikaz ostvarenih naučnih doprinosa

U okviru ove doktorske disertacije ostvaren je značajan doprinos razumevanju mehanizma sinterovanja kordijeritnih prahova dobijenih različitim sol-gel postupcima. Najznačajniji naučni doprinosi ove disertacije su:

- Definisan je mehanizam i određeni kinetički parametri kristalizacije kordijerita iz gela koji je dobijen sol-gel postupkom u kome je kao prekursor korišćena silicijumova kiselina;
- Utvrđen je uticaj vrste sol-gel postupka sinteze gela i temperature kalcinacije gela na mikrostrukturne i mehaničke karakteristike sinterovanih materijala;
- Sistematskim ispitivanjem uticaja različitih parametara procesa utvrđeni su optimalni uslovi dobijanja guste kordijeritne keramike konvencionalnim sinterovanjem, polazeći od prahova koji su dobijeni sol-gel postupcima;
- Pokazano je da se sinterovanjem prahova koji sadrže dobro kristalisani α -kordijerit dobijaju materijali boljih osobina nego u slučaju sinterovanja amorfnih prahova, čime su opovrgnuta neka mišljenja u literaturi o prednosti korišćenja prahova koji se dobijaju kalcinacijom na temperaturama na kojima dolazi do denzifikacije bez kristalizacije komponente koja sadrži SiO_2 ;
- Objašnjena je loša sinterabilnost hemijski homogenih i čistih kordijeritnih prahova pri konvencionalnom sinterovanju;
- Pokazano je da se spark-plazma sinterovanjem značajno povećava sinterabilnost hemijski homogenih i čistih kordijeritnih prahova, što je omogućilo dobijanje kordijeritnih materijala skoro teorijske gustine, veoma dobrih mehaničkih karakteristika.

4.2. Kritička analiza rezultata istraživanja

Istraživanja u okviru ove disertacije su koncipirana nakon detaljne analize literature iz oblasti sinteze prahova sol-gel postupcima i sinterovanja različitih kordijeritnih prahova.

Veliki broj istraživanja u literaturi je posvećen sintezi kordijeritnih prahova sol-gel postupcima, polazeći od različitih prekursora, pre svega od solova i alkoksida, ali je veoma malo radova o sintezi polazeći od silicijumove kiseline kao jeftinog prekursora. U ovoj doktorskoj disertaciji je pokazano da se postupkom sa silicijumovom kiselinom može dobiti hemijski homogen gel na atomskom nivou, kao i u slučaju korišćenja alkoksida, a za razliku od postupaka gde se koriste solovi, kada se postiže homogenost na koloidnom nivou. Na ovaj način je omogućeno da se hemijska homogenost na atomskom nivou postigne korišćenjem jeftinih prekursora, za razliku od alkoksidnog postupka, u kome se koriste skupi i često toksični reagensi. Takođe, prvi put je u ovoj disertaciji detaljno ispitano ponašanje ovako dobijenog gela pri termičkom tretmanu i određeni kinetički parametri kristalizacije kordijerita.

Iako se u svim radovima koji se odnose na sintezu kordijeritnih prahova sol-gel postupcima navodi da se ovim postupcima dobijaju fini prahovi velike specifične površine, velike unutrašnje energije, a time i velike sinterabilnosti, u veoma malom broju slučajeva je ispitivana sinterabilnost ovih prahova, a do sada nije urađeno sistematsko ispitivanje sinterabilnosti kordijeritnih prahova sintetizovanih različitim sol-gel postupcima. U nekoliko radova je ispitivana sinterabilnost komercijalnih, kristalnih kordijeritnih prahova, koji su sinterovani na temperaturama u blizini tačke topljenja kordijerita. S druge strane, neki autori su tvrdili da se gusta kordijeritna keramika može dobiti ako se sinteruju prahovi dobijeni kalcinacijom na temperaturama na kojima dolazi do intenzivnog skupljanja pre nego što kristališe faza koja sadrži SiO_2 , odnosno sinterovanjem amorfni prahova. Zbog toga su u ovoj doktorskoj disertaciji za ispitivanje sinterabilnosti korišćene obe vrste praha, i amorfni i kristalni, dobijeni pomoću tri različita sol-gel postupka u cilju sistematskog ispitivanja sinterabilnosti kordijeritnih prahova dobijenih sol-gel postupcima. Pokazano je da se sinterovanjem prahova koji sadrže dobro kristalisani α -kordijerit dobijaju materijali boljih osobina nego u slučaju sinterovanja amorfni prahova, čime su opovrgnuta mišljenja u literaturi o prednosti korišćenja prahova koji se dobijaju kalcinacijom na temperaturama na kojima dolazi do denzifikacije bez kristalizacije komponente koja sadrži SiO_2 . Takođe, pokazano je da je sinterabilnost čistih, hemijski homogenih prahova koji su dobijeni alkoksidnim postupkom veoma loša, što nije očekivano, imajući u vidu mišljenja da upravo takvi prahovi imaju poboljšanu sinterabilnost. Činjenica da se ovi prahovi veoma dobro sinteruju spark-plazma sinterovanjem usled pojave tečne faze na površini čestica zahvaljujući primeni visoke struje ukazuje da je za bolje sinterovanje konvencionalnim postupkom ipak neophodan neki aditiv koji bi obezbedio nastajanje male količine tečne faze na površini čestica. Spark plazma sinterovanje je prvi put u ovoj disertaciji primenjeno za dobijanje kordijeritne keramike. Mnogo bolji rezultati tokom konvencionalnog sinterovanja su dobijeni sa prahovima koji su dobijeni koloidnim postupkom i sol-gel postupkom u kome je korišćena silicijumova kiselina, što je objašnjeno prisustvom jona natrijuma u solu i kiselinu, koji su verovatno imali ulogu aditiva sinterovanja.

Rezultati istraživanja u okviru ove doktorske disertacije su potvrdili da je gustu kordijeritnu keramiku veoma teško dobiti konvencionalnim sinterovanjem bez upotrebe aditiva, ali da se primenom savremenih tehnika sinterovanja, kao što je spark-plazma sinterovanje, mogu dobiti kordijeritni materijali skoro teorijske gustine bez upotrebe aditiva sinterovanja.

4.3. Verifikacija rezultata u časopisima i saopštenjima na konferencijama

Kandidatkinja mr Nozhat Moftah El Buaishi je svoje rezultate potvrdila objavljivanjem dva rada u vrhunskom međunarodnom časopisu i saopštenjima na međunarodnom i nacionalnom skupu.

Rad u vrhunskom međunarodnom časopisu (M21)

3. **El-Buaishi, N. M.**, Jankovic-Castvan, I., Jokic, B., Veljović, Dj., Janackovic, Dj., Petrovic, R.: - Crystallization behavior and sintering of cordierite synthesized by an aqueous sol-gel route, *Ceramic International*, vol. 38, pp. 1835-1841, 2012 (**IF (2011) = 1,751**) (ISSN 0272-8842).
4. **El-Buaishi, N. M.**, Veljović, Dj., Jokic, B., Radovanović, Ž., Steins, I., Janačković, Dj., Petrović, R.: - Conventional and spark-plasma sintering of cordierite powders synthesized by sol-gel methods, *Ceramic International*, vol. 39, pp. 5845-5854, 2013 (**IF (2011) = 1,751**) (ISSN 0272-8842).

Rad saopšten na skupu međunarodnog značaja štampan u izvodu (M 34)

1. **El-Buaishi, N. M.**, Jankovic-Castvan, I., Jokic, B., Veljović, Dj., Janackovic, Dj., Petrovic, R.: "Sinterability of Cordierite Powders Synthesized by Sol-gel Methods", - Proceedings of the EUROMAT 2011, Montpellier, France, 2011., p.65,

Rad saopšten na skupu nacionalnog značaja štampan u celini (M 63)

1. **El-Buaishi, N. M.**, Arsovski, V., Veljović, Đ., Kovrlija, J., Janačković, Đ., Petrović, R.: "Sinterabilnosti kordijeritnih prahova sintetizovanih koloidnim sol-gel postupkom", - Zbornik radova 49. Savetovanja SHD, Kragujevac, 2011, str. 193 – 197.

5. ZAKLJUČAK

Kratak osvrt na disertaciju u celini

Na osnovu svega napred iznetog, Komisija smatra da doktorska disertacija mr Nozhat Moftah El Buaishi, pod nazivom: „Proučavanje sinterabilnosti kordijeritnih prahova sintetizovanih različitim sol-gel postupcima“, predstavlja veoma značajan i originalni naučni doprinos u oblasti Hemija i Hemijska tehnologija (uža oblast Inženjerstvo materijala), što je potvrđeno objavljivanjem radova u časopisu međunarodnog značaja i saopštenja na međunarodnoj i nacionalnoj konferenciji.

Predlog Komisije Nastavno-naučnom veću

Komisija predlaže Nastavno-naučnom veću TMF-a da prihvati ovaj Izveštaj i da ga zajedno sa podnetom disertacijom mr Nozhat Moftah El Buaishi, pod nazivom: „Proučavanje sinterabilnosti kordijeritnih prahova sintetizovanih različitim sol-gel postupcima“ izloži na uvid javnosti u zakonski predviđenom roku i uputi na konačno usvajanje Veću naučnih oblasti tehničkih nauka Univerziteta u Beogradu, te da nakon završetka ove procedure, pozove kandidatkinju na usmenu odbranu disertacije, pred Komisijom u istom sastavu.

Beograd, 15. 04. 2013.

Članovi Komisije

1. dr Rada Petrović, red. prof., TMF, Beograd

2. dr Đorđe Janačković, red. prof., TMF, Beograd

3. dr Snežana Grujić, van. prof., TMF, Beograd

4. dr Đorđe Veljović, naučni saradnik, Inovacioni centar
TMF-a, Beograd