

**Nastavno-naučnom veću
Tehnološko-metalurškog fakulteta
Univerziteta u Beogradu**

Na sednici Nastavno-naučnog veća Tehnološko-metalurškog fakulteta održanoj 15. 12. 2011. godine, imenovani smo za članove Komisije za ocenu naučne zasnovanosti teme doktorske disertacije kandidata mr Nozhat Moftah El Buaishi, pod nazivom: "Proučavanje sinterabilnosti kordijeritnih prahova sintetizovanih različitim sol-gel postupcima". Posle pregleda i analize dostavljenog materijala, Komisija podnosi sledeći

IZVEŠTAJ

1. Podaci o kandidatu

Mr Nozhat Moftah El Buaishi je rođena 26. 12. 1966. godine u Tripoliu 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 Tripoliu 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.

1.1. Spisak objavljenih radova koji opredeljuju afinitet kandidata na predloženoj temi

Naučni rad objavljen u vrhunskom časopisu međunarodnog značaja (M21)

1. **Nozhat Moftah El-Buaishi**, Ivona Janković-Častvan, Bojan Jokić, Djordje Veljović, Djordje Janačković, Rada Petrović, Crystallization behavior and sintering of cordierite synthesized by an aqueous sol-gel route, *Ceramics International*, <http://dx.doi.org/10.1016/j.ceramint.2011.10.008> (IF (2010) = 1,471; 5(25); ISSN 0272-8842)

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

1. **Nozhat Moftah El-Buaishi**, Ivona Janković-Častvan, Bojan Jokić, Djordje Veljović, Djordje Janačković, Rada Petrović, Sinterability of Cordierite Powders Synthesized by Sol-Gel Methods, EUROMAT 2011, Montpellier, 2011.

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

1. **Noshat M. El Buaishi**, Violeta Arsovski, Đorđe N. Veljović, Jasmina Kovrlija, Đorđe T. Janačković, Rada D. Petrović, Sinterabilnosti kordijeritnih prahova sintetizovanih koloidnim sol-gel postupkom, 49. Savetovanje SHD, Kragujevac, 2011, str. 193 – 197 (ISBN 978-86-7132-046-7)

1.2. Ocena podobnosti kandidata za rad na predloženoj temi

Na osnovu biografskih podataka, podataka o magistraturi, dosadašnjeg rada sa kandidatom i objavljenih radova, Komisija ocenjuje da je kandidat podoban za rad na predloženoj temi.

2. Predmet i cilj istraživanja

Gusta kordijeritna keramika ima veliki značaj u nauci o materijalima i široku primenu u industriji zahvaljujući malom koeficijentu toplotnog širenja kordijerita ($2\text{MgO} \cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{SiO}_2$), maloj dielektričnoj konstanti, velikoj specifičnoj otpornosti i relativno velikoj vatrostalnosti. Kordijeritna keramika se može dobiti konvencionalnim postupcima, ali je veoma teško sinterovanjem dobiti gust materijal, zbog veoma uskog intervala sinterovanja kordijerita u blizini inkongruentne tačke topljenja [1-3]. Pokušaji da se problem uskog intervala sinterovanja reši aditivima [4-6] omogućili su snižavanje temperature nastajanja kordijerita i povećanje 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 u cilju dobijanja guste kordijeritne keramike usmerena na sintezu prahova kordijerita poboljšane sinterabilnosti. Različitim hemijskim postupcima sinteze mogu se dobiti fini prahovi velike specifične površine, velike unutrašnje energije, a time i velike sinterabilnosti [7-17].

Sol-gel postupak omogućava dobijanje prahova definisanog hemijskog i faznog sastava, zahvaljujući mogućnosti precizne kontrole parametara sinteze [17]. Poslednjih godina primenjivani su različiti sol-gel postupci u cilju dobijanja kordijeritnih prahova velike sinterabilnosti. Polimerni sol-gel postupci u kojima se koriste alkoksidi obezbeđuju hemijsku

homogenost na atomskom nivou, ali su reaktanti skupi, često toksični, a sam proces kompleksan zbog neophodnosti precizne kontrole velikog broja parametara [7, 8, 11]. Koloidni sol-gel postupci [8, 13, 16] obezbeđuju znatno niže temperature formiranja kordijerita u odnosu na konvencionalne postupke, zahvaljujući znatno manjim veličinama čestica reaktanata. U odnosu na alkoksidni, koloidni postupak koristi jeftinije reaktante, koji nisu toksični, pri čemu je sam proces manje kompleksan. Pokazano je da iz koloidnih, trofaznih gelova kristališu spinel i kristobalit, koji reaguju na višim temperaturama dajući α -kordijerit [8, 13, 16], dok je reakcioni put nastajanja α -kordijerita kod alkoksidnog postupka drugačiji, jer iz homogenog, monofaznog gela prvo kristališe μ -kordijerit, koji se na višim temperaturama transformiše u α -kordijerit [7, 8, 11]. U oba slučaja, α -kordijerit nastaje na temperaturama oko 1300 °C. Zbog visoke temperature sinteze α -kordijerita, neophodno je primeniti mlevenje u cilju dobijanja kordijeritnih prahova, koji se zatim kompaktiraju i sinteruju na različitim temperaturama.

Predmet ove doktorske disertacije je ispitivanje sinterabilnosti kordijeritnih prahova koji će biti sintetizovani alkoksidnim i koloidnim sol-gel postupkom, kao i sol-gel postupkom u kome će kao polazni reaktant biti korišćena silicijumova kiselina, dobijena iz vodenog stakla, kao jeftinog prekursora. Proučiće se fazne transformacije tokom termičkog tretmana gela dobijenog postupkom sa silicijumovom kiselinom, kao i kinetika tih faznih transformacija. Pri proučavanju sinterabilnosti prahova koji će biti sintetisani korišćenjem silicijumove kiseline, alkoksida i koloidnog SiO_2 ispitaće se uticaj: temperature kalcinacije gelova, dužine trajanja mlevenja kalciniranih gelova i temperature sinterovanja na mikrostrukturne i mehaničke karakteristike dobijenih materijala. Suvi gelovi će, u sva tri slučaja, biti kalcinirani na temperaturi pri kojoj dolazi do viskoznog sinterovanja bez kristalizacije komponente koja sadrži SiO_2 i na temperaturi na kojoj nastaje α -kordijerit. Dobijeni prahovi će biti mleveni tokom različitih vremenskih intervala i presovani uniaksijalno. Pored konvencionalnog sinterovanja, neki kordijeritni prahovi će biti mikrotalasno i spark-plazma sinterovani u cilju sniženja temperature sinterovanja i poboljšanja performansi dobijenih materijala.

Literatura:

1. M. A. Camerucci, G. Urretavizcaya, A. L. Cavalieri, Sintering of Cordierite Based Materials, *Ceram. Int.* 29 (2003) 159–168.
2. S. Taruta, T. Hayashi, K. Kitajima, Preparation of Machinable Cordierite/mica Composite by Low-temperature Sintering, *J. Eur. Ceram. Soc.* 24 (2004) 3149–3154.
3. M. A. Camerucci, G. Urretavizcaya, A. L. Cavalieri, Mechanical Behavior of Cordierite and Cordierite-mullite Materials Evaluated by Indentation Techniques, *J. Eur. Ceram. Soc.* 21 (2001) 1195–1204.
4. M. T. Malachevsky, J. E. Fiscina, D. A. Esparza, Preparation of Synthetic Cordierite by Solid-state Reaction via Bismuth Oxide Flux, *J. Am. Ceram. Soc.* 84 (2001) 1575–1577.

5. S. Mei, J. Yang, J. M. F. Ferreira, Microstructural Evolution in Sol-gel Derived P_2O_5 -doped Cordierite Powders. *J. Eur. Ceram. Soc.* 20 (2000) 2191–2197.
6. K. Sumi, Y. Kobayashi, E. Kato, Low-temperature Fabrication of Cordierite Ceramics from Kaolinite and Magnesium Hydroxide with Boron Oxide Additions, *J. Am. Ceram. Soc.* 82 (1999) 783–785.
7. H. Suzuki, K. Ota, H. Saito, Preparation of Cordierite Ceramics from Metal Alkoxides (Part 1) - Preparation and Characterization of the Powder, *J. Ceram. Soc. Japan (Yogyo-Kyokai-Shi)* 95 (1987) 163–169.
8. A. M. Kazakos, S. Komarneni, R. Roy, Sol-gel Processing of Cordierite: Effect of Seeding and Optimization of Heat Treatment, *J. Mater. Res.* 5 (1990) 1095–1103.
9. R. Ianos, I. Lazau, C. Pacurariu, Solution Combustion Synthesis of α -cordierite, *J. Alloy Compd.* 480 (2009) 702–705.
10. R. Goren, H. Gocmez, C. Ozgur, Synthesis of Cordierite Powder from Talc, Diatomite and Alumina, *Ceram. Int.* 32 (2006) 407–409
11. C. Ghitulica, E. Andronescu, O. Nicola, A. Dicea, M. Birsan, Preparation and Characterization of Cordierite Powders, *J. Eur. Ceram. Soc.* 27 (2007) 711–713.
12. Dj. Janačković, V. Jakanović, Lj. Kostić-Gvozdenović, S. Zec, D. Uskoković, Synthesis and Formation Mechanism of Submicrometre Spherical Cordierite Powders by Ultrasonic Spray Pyrolysis, *J. Mater. Sci.*, 32 (1997) 163–168.
13. R. Petrović, Dj. Janačković, S. Zec, S. Drmanić, Lj. Kostić-Gvozdenović, Phase-Transformation Kinetics in Triphase Cordierite Gel, *J. Mater. Res.* 16 (2001) 451–458.
14. R. Petrović, Đ. Janačković, S. Zec, S. Drmanić, Lj. Kostić-Gvozdenović, Crystallization Behavior of Alkoxide –Derived Cordierite Gel, *J. Sol – Gel Sci. Tech.* 28 (2003) 111–118.
15. I. Janković-Častvan, S. Lazarević, D. Tanasković, A. Orlović, R. Petrović, Đ. Janačković, Phase Transformation in Cordierite Gel Synthesized by Non-Hydrolitic Sol-Gel Route, *Ceram. Int.* 33 (2007) 1263–1268.
1. R. Petrović, Dj. Janačković, B. Božović, S. Zec, Lj. Kostić-Gvozdenović, Densification and Crystallization Behaviour of Colloidal Cordierite-Type Gel, *J. Serb. Chem. Soc.* 66 (2001) 335–343.
2. J. D. Mackenzie, Applications of Sol-Gel Methods for Glass and Ceramics Processing", in: L. L. Hench, D. R. Ulrich (Eds.), *Ultrastructure Processing of Ceramics, Glasses and Composites*". John Wiley & Sons, New York, 1984, pp. 15-26

3. Polazne hipoteze

Brojna istraživanja su pokazala 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. 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. Zbog toga, u ovom radu će biti detaljno proučene vrste i kinetika faznih transformacija pri toplotnoj obradi gelova dobijenih od silicijumove kiseline, a sinterabilnost kordijeritnih prahova dobijenih ovim postupkom će biti upoređena sa sinterabilnošću prahova dobijenih koloidnim i alkoksidnim postupcima. U sva tri slučaja, prahovi za ispitivanje sinterabilnosti će biti 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 . Svi kalcinirani gelovi će biti mleveni u toku različitih vremenskih intervala i sinterovani na različitim temperaturama.

4. Naučne metode istraživanja

Kordijeritni prahovi dobijeni različitim sol-gel postupcima biće kompaktirani uniaksijalnim presovanjem na visokim pritiscima. Za dobijanje guste kordijeritne keramike primeniće se konvencionalno sinterovanje na različitim temperaturama, kao i mikrotalasno i spark plasma sinterovanje.

Za karakterizaciju kordijeritnih gelova i prahova koristiće se: rendgenska difrakciona analiza (XRD), infracrvena spektroskopska analiza (FT-IR), diferencijalno-termijska analiza (DTA), termogravimetrijska analiza (TGA), termomiktoskopska analiza, skenirajuća elektronska mikroskopija (SEM) i transmisiona elektronska mikroskopija (TEM). Kinetika procesa kristalizacije kordijerita iz gela biće određena na osnovu rezultata diferencijalno-termijske analize u neizotermnim uslovima, pri različitim brzinama zagrevanja.

Karakteristike sinterovanih materijala biće analizirane skenirajućom elektronskom mikroskopijom površine preloma, kao i poliranih i nagriženih uzoraka. Gustina dobijenih materijala biće određena Arhimedovom metodom. Mehaničke karakteristike dobijenih materijala, žilavost i tvrdoća, biće određene metodom mikroindentacije.

5. Očekivani naučni doprinos

Istraživanja u okviru ove doktorske disertacije treba da dovedu do sledećih rezultata:

- utvrđivanje mehanizma kristalizacije kordijerita iz gela koji će biti dobijen sol-gel postupkom u kome će kao prekursor biti korišćena silicijumova kiselina;
- određivanje kinetičkih parametara kristalizacije kordijerita iz gela koji će biti dobijen sol-gel postupkom u kome će kao prekursor biti korišćena silicijumova kiselina;
- utvrđivanje uticaja temperature kalcinacije gelova na mikrostrukturu i mehaničke karakteristike sinterovanih materijala;
- određivanje optimalnih parametara procesiranja (temperatura kalcinacije gelova, dužina trajanja mlevenja kalciniranih gelova, temperatura i dužina trajanja sinterovanja) za dobijanje guste kordijeritne keramike;
- dobijanje kordijeritne keramike unapređenih svojstava primenom mikrotalasnog i spark-plazma sinterovanja.

6. Plan istraživanja i struktura rada

I Literaturni pregled prethodnih istraživanja o:

- sintezi prahova kordijerita različitim hemijskim postupcima sinteze,
- dobijanju guste kordijeritne keramike sinterovanjem.

II Eksperimentalni deo

- sinteza kordijeritnih gelova koloidnim sol-gel postupkom, korišćenjem sola SiO_2 , sola AlOOH i soli magnezijuma; alkoksidnim sol-gel postupkom, korišćenjem alkoksida silicijuma, aluminijuma i magnezijuma; i sol-gel postupkom korišćenjem silicijumove kiseline i soli aluminijuma i magnezijuma;
- proučavanje faznih transformacija tokom toplotne obrade gela dobijenog postupkom sa silicijumovom kiselinom i određivanje kinetike kristalizacije kordijerita;
- priprema prahova za ispitivanje sinterabilnosti kalcinacijom gelova i mlevenjem u toku različitih vremenskih intervala, kao i karakterizacija dobijenih prahova;
- uniaksijalno presovanje kordijeritnih prahova i konvencionalno sinterovanje dobijenih kompakata na različitim temperaturama;
- analiza mikrostrukture sinterovanih materijala skenirajućom elektronskom mikroskopijom i određivanje mehaničkih karakteristika metodom mikroindentacije;
- sinterovanje odabranih prahova metodama mikrotalasnog sinterovanja i spark-plazma sinterovanja i karakterizacija dobijenih materijala.

III Diskusija dobijenih rezultata i zaključci.

7. Zaključak i predlog

Na osnovu izloženog, Komisija smatra da je tema doktorske disertacije "Proučavanje sinterabilnosti kordijeritnih prahova sintetizovanih različitim sol-gel postupcima", koju je predložila mr Nozhat Moftah El Buaishi, naučno zasnovana, pa predlaže Nastavno-naučnom veću Tehnološko-metalurškog fakulteta da je prihvati i da za mentora imenuje dr Radu Petrović, vanrednog profesora Tehnološko-metalurškog fakulteta u Beogradu. Predložena tema pripada oblastima Inženjerstvo neorganskih hemijskih proizvoda i Inženjerstvo materijala.

U Beogradu, 27. 01. 2012.

ČLANOVI KOMISIJE

1. dr Rada Petrović, vanredni profesor, mentor
Tehnološko-metalurški fakultet, Beograd
2. dr Đorđe Janačković, redovni profesor
Tehnološko-metalurški fakultet, Beograd
3. dr Đorđe Veljović, naučni saradnik
Inovacioni centar Tehnološko-metalurškog
Fakulteta, Beograd