

НАСТАВНО-НАУЧНОМ ВЕЋУ

Предмет: Реферат о урађеној докторској дисертацији кандидата **Јелене Голубовић, мастер инж. технологије**

Одлуком бр. 35/92 од 25.04.2024 године, именовани смо за чланове Комисије за преглед, оцену и одбрану докторске дисертације кандидата **Јелене Голубовић** под насловом **„Електрохемијска редукција кисеоника на наночестицама злата, паладијума и платине таложеним на стакласти угљеник“**

После прегледа достављене Дисертације и других пратећих материјала и разговора са Кандидатом, Комисија је сачинила следећи

РЕФЕРАТ

1. УВОД

1.1. Хронологија одобравања и израде дисертације

13.10.2017. Јелена Голубовић, мастер инжењер технологије, уписала је докторске студије на Катедри за Физичку хемију и електрохемију Технолошко-металуршког факултета, Универзитета у Београду.

14.09.2022. Јелена Голубовић је Наставно-научном већу Технолошко-металуршког факултета Универзитета у Београду предложила тему за израду докторске дисертације под називом **„Електрохемијска редукција кисеоника на наночестицама злата, паладијума и платине таложеним на стакласти угљеник“**.

20.09.2022. На седници Наставно-научног већа Технолошко-металуршког факултета, Универзитета у Београду, одлуком бр. **35/226**, именована је Комисија за оцену подобности теме и кандидата за израду докторске дисертације у саставу др Милица Гвозденовић, редовни професор Технолошко-металуршког факултета Универзитета у Београду, др Светлана Штрбац, научни саветник Института за хемију, технологију и металургију, Универзитета у Београду, др Бранимир Гргур, редовни професор, Технолошко-металуршког факултета Универзитета у Београду.

22.11.2022. На седници Наставно-научног већа Технолошко-металуршког факултета, Универзитета у Београду, одлуком бр. **35/282**, усвојен је извештај Комисије за оцену подобности теме и кандидата за израду докторске дисертације. За менторе су именовани др Милица Гвозденовић, редовни професор Технолошко-металуршког факултета Универзитета у Београду и др Светлана Штрбац, научни саветник Института за хемију, технологију и металургију, Универзитета у Београду.

12.12.2022. Одлуком бр. **61206-4894/2-22**, Веће научних области техничких наука Универзитета у Београду даје сагласност на предлог теме кандидата Јелене Голубовић под називом: “Електрохемијска редукација кисеоника на наночестицама злата, паладијума и платине таложеним на стакласти угљеник”.

02.10.2024. На молбу студента, а уз сагласност ментора, декан Факултета је донео решење број 20/170 о продужењу рока за завршетак студија до шк. 2026/27.

25.04.2024. Одлуком бр. **35/92**, на седници Наставно-научног већа Технолошко-металуршког факултета Универзитета у Београду, именована је Комисија за оцену докторске дисертације Јелене Голубовић, мастер инжењера технологије, под насловом: “Електрохемијска редукација кисеоника на наночестицама злата, паладијума и платине таложеним на стакласти угљеник” у саставу др Бранимир Гргур, редовни професор, Технолошко-металуршког факултета Универзитета у Београду, др Снежана Гојковић, редовни професор Технолошко-металуршког факултета Универзитета у Београду и др Мирослава Варничкић, научни сарадник Института за хемију, технологију и металургију, Универзитета у Београду.

1.2. Научна област дисертације

Истраживања у оквиру ове докторске дисертације припадају научној области Технолошко инжењерство, ужа научна област Хемијско инжењерство, за коју је матичан Технолошко-металуршки факултет Универзитета у Београду. Ментори ове докторске дисертације су др Милица Гвозденовић, редовни професор Технолошко-металуршког факултета Универзитета у Београду и др Светлана Штрбац, научни саветник у пензији, Института за хемију, технологију и металургију, Универзитета у Београду, чија је компетенција за вођење докторске дисертације потврђена на основу искуства и објављених публикација из области којој дисертација припада.

1.3. Биографски подаци о кандидату

Јелена Голубовић је рођена 20.02.1993. године у Смедеревској Паланци, где је стекла основно и средње образовање. Основне академске студије (смер: хемијско инжењерство, образовни профил: Електрохемијско инжењерство) завршила је 2016. године на Катедри за физичку хемију и електрохемију са завршним испитом на тему „Полипирол као електродни материјал секундарних електрохемијских извора електричне енергије“ на Технолошко-металуршком факултету, Универзитет у Београду. Мастер академске студије (смер: хемијско инжењерство) је завршила 2017. године на Катедри за физичку хемију и електрохемију на Технолошко-металуршком факултету. Тема завршног мастер рада је била „Алкидне превлаке модификоване полианилином као инхибитором корозије“. Школске 2017/2018. године уписала је докторске академске студије на Технолошко-металуршком факултету, на студијском програму Хемијско инжењерство под руководством ментора др Милице Гвозденовић, ред. професора на Технолошко-металуршком факултету и ментора др Светлане Штрбац, Научног саветника Института за хемију, технологију и металургију.

Од марта 2020. године запослена је у Научној установи Институт за хемију, технологију и металургију–Институт од националног значаја, Центар за електрохемију, Универзитет у Београду, као истраживач приправник. Њена интересовања и истраживања фокусирана су на испитивање активности биметалних наночестица таложених на подлоге од различитих угљеничних материјала за електрокатализу реакције редукације кисеоника и реакције издвајања водоника. У току израде дисертације бави се испитивањем реакције редукације кисеоника на напредним катализаторима на бази наночестица племенитих метала таложених

на електроду од стакластог угљеника. Ради под непосредним руководством др Светлане Штрбац, научног саветника Института за хемију, технологију и металургију, Центар за електрохемију.

Активно се служи енглеским језиком.

2. ОПИС ДИСЕРТАЦИЈЕ

2.1. Садржај дисертације

Докторска дисертација Јелене Голубовић, мастер инж. технологије под називом “Електрохемијска редукација кисеоника на наночестицама злата, паладијума и платине таложеним на стакласти угљеник” написана је на 120 страна, у оквиру којих се налази 45 слика, 7 табела и 295 литературних навода. Докторска дисертација садржи шест целина: Увод и мотивацију, Теоријски део, Експериментални део, Резултате и дискусију, Закључак и Литературу. Теоријски део подељен је у осам потпоглавља, Експериментални део је подељен у четири потпоглавља, док су Резултати и дискусија подељени у четири потпоглавља. На почетку дисертације дат је Сажетак на српском и енглеском језику. Уз текст дисертације приложена је и биографија аутора као и додаци прописани правилима Универзитета о подношењу докторских теза на одобравање. По форми и садржају, написана дисертација задовољава све стандарде Универзитета у Београду за докторску дисертацију.

2.2. Кратак приказ појединачних поглавља

У поглављу **Увод и мотивација** је дат приказ проблематике која је обрађена у дисертацији. Указано је на недостатак релевантних истраживања на тему испитивања електрохемијске редукације кисеоника на електродама добијеним таложењем наночестица племенитих метала на подлогу од стакластог угљеника за њихову примену у горивним ћелијама. Садржи једно потпоглавље. У потпоглављу **Циљ рада** је описан предмет истраживања и дефинисани су основни научни циљеви ове докторске дисертације.

Теоријски део подељен је у осам потпоглавља. Овај део дисертације обухвата преглед важних појмова везаних за електрохемијске процесе, горивне ћелије, електрокатализу, као и електрохемијску редукацију кисеоника. У првом и другом потпоглављу је дат теоријски увод о електрохемијским процесима и електрохемијској ћелији. У трећем потпоглављу је приказан основни принцип рада горивних ћелија, као и њихова подела и особине. У четвртном потпоглављу су приказани и дефинисани важни појмови и основне једначине у електрохемијској кинетици. У петом потпоглављу је описан и шематски приказан механизам одигравања електрохемијске редукације кисеоника. У шестом потпоглављу дата је опис каталитичке активности за електрохемијску редукацију кисеоника који укључује приказ вулканских кривих и објашњење геометријских и електронских ефеката који узрокују катализу или инхибицију електрохемијске редукације кисеоника. У Седмом потпоглављу дат је детаљан преглед литературе везане за електрохемијску редукацију кисеоника на наночестицама злата, паладијума и платине као и на биметалним системима паладијум – злато и паладијум – платина, на угљеничним подлогама. У осмом потпоглављу је дат преглед и опис коришћених експерименталних метода и њихове теоријске основе. За електрохемијску карактеризацију и испитивање каталитичких особина коришћене су класичне електрохемијске технике цикличне (енг. *Cyclic voltammetry*) и линеарне (енг. *Linear sweep voltammetry*) волтаметрије, као и метода ротирајуће диск електроде (енг. *Rotating disc electrode* – РДЕ), док је за површинску карактеризацију испитиваних електрода коришћена техника микроскопије атомских сила (енг. *Atomic force microscopy* – АФМ).

Експериментални део је подељен у четири потпоглавља. У оквиру експерименталног дела је дат опис припреме радних електрода, карактеризације радних електрода и испитивања електрокаталитичких особина за електрохемијску редуkcију кисеоника, као и коришћени раствори. Радне електроде су припремане електрохемијским таложењем методом хроноамперометрије и спонтаним таложењем на потенцијалу отвореног кола. Испитивање морфологије површине вршено је микроскопијом атомских сила док су за електрохемијску карактеризацију и испитивање електрокаталитичких особина за електрохемијску редуkcију кисеоника коришћене стандардне електрохемијске технике цикличне волтаметрије и линеарне волтаметрије са ротирајућом диск електродом. У потпоглављу Коришћени раствори су наведене све хемикалије које су коришћене у овој дисертацији, и њихови произвођачи.

Резултати и дискусија су подељени у четири потпоглавља у којима су приказани резултати проистекли из ове докторске дисертације. Ова потпоглавља обухватају: Испитивање електрохемијске редуkcије кисеоника на Au/GC и PdAu/GC електродама, Испитивање електрохемијске редуkcије кисеоника на Pd/GC електродама, Испитивање електрохемијске редуkcије кисеоника на Pt/GC и PdPt/GC електродама и Поређење каталитичке активности испитиваних електрода, у којима су приказани, анализирани, детаљно објашњени и упоређени са литературним подацима добијени резултати за сваку појединачну радну электроду. У свим потпоглављима прво је приказан начин припреме електрода. Затим је извршена површинска и електрохемијска карактеризација електрода техникама микроскопије атомских сила и цикличне волтаметрије, редно. Приказани су циклични волтамограми и детаљно објашњени оксидо-редуkcиони процеси до којих долази на површинама испитиваних електрода и у киселој и у алкалној средини. Техником линеарне волтаметрије са ротирајућом диск електродом су добијене и приказане поларизационе криве за електрохемијску редуkcију кисеоника. Приказани су резултати испитивања и поређења каталитичке активности за електрохемијску редуkcију кисеоника на радним електродама и у киселој и у алкалној средини. Детаљном кинетичком анализом поларизационих кривих добијени су подаци на основу којих је предложен механизам реакције редуkcије кисеоника на свим испитиваним електродама.

У поглављу **Закључак** приказани су најважнији закључци изведени на основу експерименталних резултата изложених у претходним поглављима.

У делу **Литература** наведене су све референце цитиране у докторској дисертацији

3. ОЦЕНА ДИСЕРТАЦИЈЕ

3.1. Савременост и оригиналност

Услед све веће потражње за енергијом и убрзаног исцрпљивања нафтних резерви повећана је потреба за ефикаснијим и чистијим изворима енергије који се добијају модерним технологијама, стога прелазак на обновљиве изворе енергије, примарне и секундарне изворе енергије је кључан за даљи развој, и од великог великог је значаја за будућност. Горивне ћелије као секундарни извори електричне енергије представљају системе који конвертују хемијску енергију директно у електричну енергију, имају могућност дуготрајног складиштења енергије и широку примену у свакодневном животу. Један од изазова је да се пронађе материјал који би послужио као електрокатализатор и учинио горивну ћелију још ефикаснијом. Због тога се велика пажња поклања проналаску анодних материјала на којима долази до оксидације горива, али и одговарајућих катодних катализатора, с обзиром да је даље унапређење ефикасности горивне ћелије ограничено њеном катодном реакцијом,

односно реакцијом редукције кисеоника. Велика пажња је усмерена на истраживања у циљу бољег разумевања механизма и кинетике реакције редукције кисеоника у горивним ћелијама, као и на развој напредних катализатора који би допринели побољшању ефикасности горивне ћелије.

У овој дисертацији је показано да се на веома једноставан, брз и ефикасан начин, методом електрохемијског таложења и накнадним спонтаним таложењем могу добити модерни електрокатализатори на бази наночестица племенитих метала, злата, паладијума и платине, који имају иста или боља каталитичка својства за електрохемијску редукцију кисеоника од самих племенитих метала а истовремено се тим начином примене постиже велика уштеда у њиховој потрошњи. Добијени резултати током израде ове дисертације су веома значајни за развој катализатора за електрохемијску редукцију кисеоника јер варирањем различитих параметара електрохемијског таложења племенитих метала, потенцијала и времена таложења, као и врсте и концентрације раствора из кога се врши таложење, одређена је оптимална количина и расподела наночестица на површини подлоге за које добијене електроде показују најбоља каталитичка својства за електрохемијску редукцију кисеоника. Модификација електрода спонтаним таложењем другог одређеног племенитог метала допринела је побољшању каталитичке активности услед електронске модификације и узајамног синергетског дејстава. Детаљна кинетичка анализа и одређивање кинетичких параметара на испитиваним електродама допринело је тумачењу механизма за реакцију редукције кисеоника.

3.2. Осврт на референтну и коришћену литературу

У току израде докторске дисертације кандидат је извршио детаљан преглед научне и стручне литературе из области електрокатализе реакције редукције кисеоника у вези са темом истраживања. У докторској дисертацији цитирано је 295 литературних навода, од чега је највећи број навода објављен у претходних 5 до 10 година. Ово потврђује актуелност изучаване проблематике у свету. Литература углавном обухвата објављене радове из области фундаменталних истраживања механизма електрохемијске редукције кисеоника, као и електрокатализе електрохемијске редукције кисеоника на различитим наночестицама племенитих метала, злата, паладијума и платине, таложених на угљеничне подлоге, као и биметалним системима злато – паладијум, злато – платина који показују побољшана каталитичка својства у односу на матичне племените метале.

Прегледана литература и приложени објављени радови указују на адекватно познавање предметне области истраживања.

3.3. Опис и адекватност примењених научних метода

У току израде ове докторске дисертације припрема радних електрода вршена је електрохемијским таложењем наночестица злата, паладијума и платине на подлогу од стакластог угљеника, методом хроноамперометрије, на задатим константним потенцијалима и временима таложења, и накнадним спонтаним таложењем паладијума на потенцијалу отвореног кола, у циљу добијања биметалних површина. За карактеризацију површина добијених електрокатализатора коришћена је техника микроскопије атомских сила. Анализа резултата дала је увид о величини и расподели наночестица по подлози, као и о укупној покривености подлоге наночестицама. Коришћењем фазног начина рада микроскопије атомских сила који је осетљив на разлику у хемијском саставу површине, потврђено је присуство различитих наночестица племенитих метала на подлози. За електрохемијску карактеризацију површина добијених катализатора, коришћена је техника цикличне волтаметрије, док је техника линеарне волтаметрије са ротирајућом диск електродом

коришћена за испитивање електрокаталитичке активности и механизма реакције редукције кисеоника. Резултати добијени наведеним техникама допринели су објашњењу и бољем разумевању побољшане катализе испитиваних електрода за електрохемијску редукцију кисеоника.

3.4. Применљивост остварених резултата

Резултати приказани у оквиру ове докторске дисертације представљају искорак ка превазилажењу недостатка примене катализатора на бази племенитих метала за реакцију редукције кисеоника, за примену у горивним ћелијама. У дисертацији су добијени напредни катализатори на бази наночестица злата, паладијума и платине чија активност за електрохемијску редукцију кисеоника је иста или чак премашује активност самих племенитих метала, злата, паладијума и платине. Испитана је и упоређена каталитичка активност за реакцију редукције кисеоника на радним електродама, и утврђен је механизам по коме се реакција одиграва. Поред тога, кинетичка анализа омогућава боље разумевање и увид у механизам реакције редукције кисеоника који се одвија на испитиваним површинама. Резултати добијени у овој докторској дисертацији представљају добру основу за даља истраживања, развој модерних електрокатализатора на бази наночестица племенитих метала и примену тих електрокатализатора у горивним ћелијама. Резултати добијени у истраживањима у оквиру ове докторске дисертације верификовани су објављивањем радова у часописима међународног значаја.

3.5. Оцена достигнутих способности кандидата за самостални научни рад

У свом досадашњем истраживачком раду кандидат Јелена Голубовић, мастер инжењер технологије, показала је стручност и самосталност у претраживању и коришћењу научне литературе, планирању и реализацији експеримената, обради и анализи добијених података, дискусији резултата и припреми публикација. Комисија је на основу досадашњег залагања и постигнутих резултата, као и на основу поднете докторске дисертације, утврдила да кандидат поседује све квалитете неопходне за самостални научно-истраживачки рад.

4. ОСТВАРЕНИ НАУЧНИ ДОПРИНОС

4.1. Приказ остварених научних доприноса

Научни доприноси резултата истраживања остварених у оквиру ове докторске дисертације, а у области електрокатализе реакције редукције кисеоника, огледају се у следећем:

- Развијене су електроде на бази наночестица злата, паладијума и платине са већом каталитичком активношћу за реакцију редукције кисеоника у односу на електроде монокристала и поликристала злата, платине и паладијума, при чему се остварује уштеда у потрошњи племенитих метала;
- Испитани су и дефинисани оптимални експериментални услови таложења наночестица злата, паладијума и платине при којима добијене електроде показују највећу каталитичку активност за реакцију редукције кисеоника;

- Одређене електроде су модификоване додатком наночестица племенитих метала у циљу развоја биметалних електрода које би показале побољшану каталитичку активност за реакцију редукције кисеоника у односу на електроде добијене таложењем наночестица појединачних племенитих метала;
- Постигнуто је боље разумевање и тумачење механизма реакције редукције кисеоника на испитиваним електродама;
- Постигнут је развој напредних јефтиних катализатора на бази наночестица племенитих метала са побољшаним перформансама.
- Испитане електроде су се показале као погодни катализатори за електрохемијску редукцију кисеоника и примену у горивним ћелијама.

4.2. Критичка анализа резултата истраживања

Резултати проистекли из ове докторске дисертације пружају значајне информације о могућности коришћења добијених катализатора за електрохемијску редукцију кисеоника и примену у горивним ћелијама. Утврђен је начин припреме и извршена је електрохемијска карактеризација радних електрода у киселој и базној средини на катализаторима добијеним таложењем наночестица злата, паладијума и платине на подлогу од стакластог угљеника. Посебна пажња у оквиру дисертације посвећена је детаљнијој кинетичкој анализи, односно испитивању електрохемијских и каталитичких особина за реакцију редукције кисеоника, као и одређивању кинетичких параметара и механизма реакције редукције кисеоника на радним електродама, и поређењу њихове електрокаталитичке активности. Испитана је каталитичка активност Au/GC, PdAu/GC, Pd/GC, Pt/GC и PdPt/GC електрода и упоређена је са активношћу поликристалних електрода злата, паладијума и платине. Све наведене електроде осим Au/GC која је мање активна у алкалној средини, показују побољшану каталитичку активност за електрохемијску редукцију кисеоника, у односу на поликристале метала са којима се пореде. На одређеним електродама примећен је синергетски ефекат који доприноси побољшању активности у односу на појединаче основне метале.

Научни допринос ове дисертације се може валоризовати и кроз три објављена рада у релевантним међународним часописима.

4.3. Верификација научних доприноса

Кандидат Јелена Голубовић је резултате свог истраживања током израде ове дисертације потврдио објављивањем радова у часописима међународног значаја. Из ове докторске дисертације проистекли су следећи резултати: један рад у истакнутом часопису међународног значаја (M22) и два рада објављена у међународном часопису (M23).

Категорија M22:

1. **Golubović J.**, Rakočević L., Vasiljević Radović D., Štrbac S.: Improved Oxygen Reduction on GC-Supported Large-Sized Pt Nanoparticles by the Addition of Pd, - *Catalysts*, vol. 12, no. 9, 2022, pp. 968. (IF (2021): 4.501, ISSN: 2073-4344)

Категорија M23:

1. **Golubović J.**, Rakočević L., Štrbac S.: The Effect of Sulphate and Chloride Palladium Salt Anions on the Morphology of Electrodeposited Pd Nanoparticles and their Catalytic Activity for

Oxygen Reduction in Acid and Alkaline Media, - *International Journal of Electrochemical Science*, vol. 17, 2022, 220943. (IF (2021): 1.541, ISSN 1452-3981)

2. **Golubović J.**, Srejić I., Štrbac S.: Oxygen Reduction on Glassy Carbon-Supported PdAu Nanoparticles in Perchloric Acid Solution, - *International Journal of Electrochemical Science*, vol. 16, 2021, 210818. (IF (2021): 1.541, ISSN 1452-3981)

5. ЗАКЉУЧАК И ПРЕДЛОГ

На основу свега наведеног Комисија сматра да докторска дисертација кандидата **Јелене Голубовић**, мастер инжењера технологије, под насловом „**Електрохемијска редукција кисеоника на наночестицама злата, паладијума и платине таложеним на стакласти угљеник**” представља значајан и оригиналан научни допринос у датој области, што је и потврђено објављивањем радова у часописима међународног значаја. Предмет и циљеви који су постављени су јасно наведени и у потпуности остварени. Комисија је мишљења да ова докторска дисертација испуњава све захтеване критеријуме као и да је кандидат током израде дисертације показао научно-истраживачку способност у свим фазама израде дисертације.

Имајући у виду квалитет, обим и научни допринос постигнутих и приказаних резултата, Комисија предлаже Наставно-научном већу Технолошко-металуршког факултета Универзитета у Београду, да прихвати овај Реферат, пружи на увид јавности поднету докторску дисертацију под називом „**Електрохемијска редукција кисеоника на наночестицама злата, паладијума и платине таложеним на стакласти угљеник**“ кандидата **Јелене Голубовић**, мастер инжењера технологије, у законом предвиђеном року, као и да Реферат упути Већу научних области техничких наука Универзитета у Београду и да након завршетка процедуре позове кандидата на усмену одбрану дисертације пред Комисијом у истом саставу.

У Београду, 16.05.2024.

ЧЛАНОВИ КОМИСИЈЕ

.....
Др Бранимир Гргур, редовни професор
Универзитет у Београду, Технолошко-металуршки факултет

.....
Др Снежана Гојковић, редовни професор
Универзитет у Београду, Технолошко-металуршки факултет

.....
Др Мирослава Варничкић, научни сарадник
Универзитет у Београду, Институт за хемију, технологију и металургију