

НАСТАВНО-НАУЧНОМ ВЕЋУ

Предмет: Реферат о урађеној докторској дисертацији кандидата Јоване М. Перендија (девојачко Николић)

Одлуком бр. 35/59 од 08.04.2021. године, именовани смо за чланове Комисије за преглед, оцену и одбрану докторске дисертације кандидата Јоване М. Перендија под насловом

„Уклањање токсичних јона из водених раствора применом адсорбената на бази модификоване целулозе“

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

- Школске 2015/16. год. - Кандидат Јована М. Перендија, уписала је докторске студије на Технолошко-металуршком факултету Универзитета у Београду, студијски програм Хемија.
- 01.06.2017. год. - Одлуком Наставно-научног већа Технолошко-металуршког факултета бр. 35/180 именована је Комисија за оцену подобности теме и кандидата Јоване М. Перендија, под називом „Уклањање токсичних јона из водених раствора применом адсорбената на бази модификоване целулозе“.
- 15.11.2018. год. - Одлуком Наставно-научног већа Технолошко-металуршког факултета бр. 35/394 прихваћен је Реферат комисије за оцену подобности теме и кандидата Јоване М. Перендија, за израду докторске дисертације под називом „Уклањање токсичних јона из водених раствора применом адсорбената на бази модификоване целулозе“. За ментора ове докторске дисертације именован је др Александар Маринковић, ванредни професор Технолошко-металуршког факултета, Универзитета у Београду.
- 29.11.2018. год. - Одлуком Већа научних области природних наука Универзитета у Београду бр. 61206-4301/8-18 дата је сагласност на предлог теме докторске дисертације Јоване М. Перендија под називом „Уклањање токсичних јона из водених раствора применом адсорбената на бази модификоване целулозе“.
- 04.02.2021. год. - Одлуком Наставно-научног већа Технолошко-металуршког факултета бр. 35/12 за новог ментора је именован др Антоније Оњиа, ванредни професор Технолошко-металуршког факултета Универзитета у Београду.
- 08.04.2021. год. – Одлуком Наставно-научног већа Технолошко-металуршког факултета бр. 35/59 именована је Комисија за оцену и одбрану докторске дисертације Јоване М. Перендија, под називом „Уклањање токсичних јона из водених раствора применом адсорбената на бази модификоване целулозе“.

1.2. Научна област дисертације

Истраживања у оквиру ове докторске дисертације припадају научној области Хемијске науке и ужој научној области Аналитичка хемија за коју је матичан Технолошко-металуршки факултет Универзитета у Београду. Ментор, др Антоније Оњиа, ванредни професор Технолошко-металуршког факултета Универзитета у Београду, је на основу објављених научних радова и научног искуства компетентан да руководи изработом ове докторске дисертације.

1.3. Биографски подаци о кандидату

Кандидат Јована М. Перендија, дипл. инж. технологије, рођена је 22.01.1985. године у Београду. Основну школу и гимназију „Свети Сава“ завршила је у Београду. Године 2004. уписала је студије на Технолошко-металуршком факултету Универзитета у Београду, студијски програм Хемијска технологија и дипломирала 23.02.2012. године, са просечном оценом 8,51 и оценом дипломског рада 10,0. Докторске студије уписала је школске 2015/2016. године на Технолошко-металуршком факултету, Универзитета у Београду, студијски програм Хемија. Испите на докторским студијама је положила са просечном оценом 10,0.

Јована М. Перендија је од 01.02.2015. године запослена у Научној установи Институт за хемију, технологију и металургију, Институт од националног значаја за Републику Србију, Универзитета у Београду, Центар за екологију и техноекономику, као истраживач приправник, а од фебруара 2018. године као истраживач сарадник. Од фебруара 2015. године била је ангажована је на пројекту Министарства просвете, науке и технолошког развоја Републике Србије: ОИ 176018 „Геолошка и екотоксиколошка истраживања у идентификацији геопатогених зона токсичних елемената у акумулацијама воде за пиће - истраживање метода и поступака смањивања утицаја биогеохемијских аномалија“. Током рада активно је ангажована као аналитичар у Аналитичко-еколошкој лабораторији за испитивање вода и предмета опште употребе у оквиру Центра за екологију и техноекономику, НУ ИХТМ. Такође, ради на пословима везаним за акредитацију лабораторије по стандарду СРПС ИСО 17025. Ово ангажовање укључује увођење, развијање и примену нових метода анализе, као и њихову валидацију и рад на конкретним узорцима. У периоду 2018-2019. године била је ангажована на пројекту билатералне сарадње између Републике Кине и Републике Србије „Испитивање механизма цветања азотофиксирајућих цијанобактерија изазваних кружењем азота у седименту плитких језера“, ев. бр. пројекта 04-10 (“A study on mechanisms behind blooms of N₂-fixing cyanobacteria driven by nitrogen cycling in sediment of shallow lakes”).

Област научноистраживачког рада Јоване М. Перендија обухвата синтезу, модификацију, оптимизацију и карактеризацију нових адсорбената на бази целулозе за примену у уклањању токсичних јона из водених раствора. Кандидат је у статусу студента у границама 3-6 година. Јована М. Перендија је аутор и коаутор четири публикована рада у научним часописима међународног значаја и три рада у часописима националног значаја. Аутор је или коаутор два саопштења на конференцијама међународног значаја штампаних у целини, шест саопштења са међународних скупова штампаних у изводу, два саопштења са скупова националног значаја штампаних у целини и пет саопштења са скупова националног значаја штампаних у изводу. Коаутор је једног техничког решења.

Из области истраживања којој припада тема докторске дисертације до сада је објавила два рада у врхунским међународним часописима (M21) и један рад у националном часопису (M53).

Јована М. Перендија поседује активно знање енглеског и руског језика.

2. ОПИС ДИСЕРТАЦИЈЕ

2.1. Садржај дисертације

Докторска дисертација кандидата Јоване М. Перендија, под називом „Уклањање токсичних јона из водених раствора применом адсорбената на бази модификоване целулозе“ написана је на 127 нумерисаних страна, у оквиру којих се налази 49 слика, 55 табела и 247 литературних навода. Докторска дисертација садржи следећа поглавља: **Сажетак** (на српском и енглеском језику), **Увод**, **Теоријски део**, **Експериментални део**, **Резултати и дискусија**, **Закључак и Литература**. Кандидаткиња је уз текст дисертације приложила Биографију и три изјаве (Изјаву о ауторству, Изјаву о истоветности штампане и електронске верзије докторског рада као и Изјаву о коришћењу) прописане правилима Универзитета о подношењу докторских дисертација на одобравање. По својој форми и садржају, текст докторске дисертације задовољава све стандарде Универзитета у Београду за докторску дисертацију.

2.2. Кратак приказ појединачних поглавља

У поглављу **Увод**, наведени су предмет и циљ докторске дисертације. Овај део садржи кратак осврт на актуелност истраживања спроведених у оквиру докторске дисертације, преглед тока дисертације, од почетне идеје и значаја примењених модификација за добијање нових врста адсорбената на бази целулозе у форми мембране, полазећи од еколошки прихватљивих и економичних сировина, преко метода карактеризације и дефинисања својстава.

У **Теоријском делу** детаљно је дат опис проблематике везане за присуство токсичних јона у воденој средини, последице по људско здравље и актуелне законске регулативе, са циљем увида у потребу проналазак нових сепарационих медијума побољшаних својстава. Приказане су постојеће методе које се користе у издвајању јона метала и оксианјона из воде, са нагласком на предностима примене методе адсорпције. Дат је преглед релевантне литературе са анализом адсорбената који садрже целулозу различитог порекла, уз посебни осврт на значај примене целулозних материјала у процесима адсорпције токсичних јона и ефикасност до сада примењених целулозних адсорбената. Детаљно су описане структура и морфологија целулозе како би се боље разумеле карактеристике и развили ефикасни поступци модификације овог биоразградивог, обновљивог и биокompatibilног полимера. Дат је преглед и опис материјала (лигнин, танинска киселина и дијатомејска земља) који су употребљени у овој дисертацији за унапређење адсорпционих својстава целулозних адсорбената, кроз остваривање већег адсорпционог капацитета и веће могућности поновне употребе. Детаљно су описани оксиди гвожђа и њихови оксихидроксида који се користе као адсорбенти за уклањање јона метала, Pb^{2+} и Ni^{2+} , и оксианјона, $As(V)$ и $Cr(VI)$ из водених раствора, њихова структура, поступци синтезе и таложења на површину целулозе. Представљен је допринос оксида гвожђа и њихових оксихидроксида побољшању адсорпционе ефикасности материјала на бази целулозе. Такође, приказани су и најчешће коришћени поступци за модификацију површине целулозе. У овом делу посебна пажња је посвећена приказу директних модификација површине целулозе које су значајне за постизање одговарајуће структурне стабилности и побољшаног адсорпционог капацитета у уклањању токсичних јона. Представљени су досадашњи литературни резултати остварени применом хибридних адсорбената на бази целулозе, коришћених у уклањању јона метала и оксианјона из воде.

У **Експерименталном делу** описани су полазни материјали и реагенси који су коришћени током израде тезе. Дат је детаљан опис услова и поступака примењених за припрему, предтретман, модификацију целулозних влакана и добијање различитих форми адсорпционих материјала (мембрана). Приказани су експериментални планови оптимизације синтезе мембрана применом методе одзивних површина (Response surface methodology, RSM). Након тога, приказане су методе карактеризације којима су испитана механичка и физичко-хемијска својства добијених адсорбената. Детаљно су описани експерименти адсорпције и услови (маса адсорбента, почетна концентрација јона, температура, време контакта, рН вредност) при којима је изведен процес уклањања јона метала, Pb^{2+} и Ni^{2+} , и оксианјона, As(V) и Cr(VI), из водених раствора у шаржном систему. Описани су експериментални услови при којима је изведен процес уклањања боја (метил оранж, метиленско плаво, реактив црна 5 и директ црвена 80) из водених раствора у шаржном систему. Приказани су кинетички модели који су коришћени за моделовање резултата добијених у шаржном систему, као и адсорпционе изотерме за три температуре на основу којих су одређени термодинамички параметри адсорпције. Дати су експериментални планови повезани са адсорпцијом јона метала и оксианјона у колони, добијени применом RSM методе која је коришћена у циљу рационализације броја експеримената и одабира оптималних оперативних параметара. Приказани су примењени емпиријски модели за предвиђање динамичког понашања мембрана у проточном систему колоне. Дати су услови при којима је испитана и процењена могућност регенерације, односно способност десорпције након адсорпционих експеримената. Описан је поступак таложења токсичних јона из воде која се добија након процеса десорпције. Описане су методе коришћене за одређивање механизма адсорпције, као и методе коришћене за квантно-хемијске прорачуне, уз навођење софтверских пакета коришћених за молекулско моделовање. На крају овог поглавља, приказани су експерименти уклањања токсичних јона из модел раствора направљених са додатком изабраних компетитивних јона, како би се испитала ефикасност добијених адсорбената у вишекомпонентном систему.

Поглавље **Резултати и дискусија** садржи приказ и анализу добијених резултата и критичко поређење са релевантним подацима из литературе. У првом делу приказани су и анализирани резултати функционализације целулозних влакана и дијатомејске земље са (3-аминопропил)триетоксисиланом као површинским модификатором/куплујућим агенсом и накнадне модификације влакана са дианхидридом диетилентриамин-пентасирћетне киселине. Представљени су резултати оптимизације синтезе магнетитом модификоване целулозне хибридне мембране остварени применом методе одзивних површина. Поступак оптимизације односио се на постизање одговарајућег садржаја карбоксилних група и капацитета уклањања токсичних јона, али и на постизање задовољавајуће порозности мембране, механичке и димензионалне стабилности. Побољшање методе за таложење магнетита, у односу на једностепени процес, постигнуто је додавањем раствора $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ у три корака, чиме је добијен униформни депозит магнетита. Праћењем промене садржаја амино и карбоксилних група током хемијских модификација доказана је успешност модификације целулозних влакана. Затим су приказани и анализирани резултати синтезе другог типа мембрана добијених у овој дисертацији (модификоване целулозне мембране са додатком епокси лигнина и танинске киселине). Оптимизоване методе су базиране на реактивности између амино група целулозних влакана, модификованих у првом кораку са 3-(карбометокси)пропионил хлоридом и диетилентриамином у другом кораку, са епокси групама целулозних влакана модификованих 3-глицидоксипропилтриметокси силаном и лигнином модификованим епихлорохидрином. Танинска киселина коришћена је као додатни умреживач. Промене вредности садржаја амино група и вредности за епоксидну еквивалентну масу, омогућиле су квантитативну процену успешности функционализације влакана. Представљени резултати истичу значај поступка оптимизације, примењеног за постизање жељених

својстава адсорбената при најмањем броју изведених експеримената. Затим су приказани резултати карактеризације целулозних влакана, функционализованих материјала и мембрана. Примењеним методама карактеризације потврђена је успешност модификације материјала.

На основу резултата студије о рН зависној адсорпцији катјона и оксианјона, одабрана је оптимална рН вредност за извођење процеса адсорпције испитиваних јона, која је обезбедила постизање високог капацитета, уз стабилност адсорбента. Резултати добијени адсорпцијом јона метала, Pb^{2+} и Ni^{2+} , и оксианјона, As(V) и Cr(VI) на магнетитом модификовану целулозну хибридную мембрану и модификоване целулозне мембране са додатком епокси лигнина и танинске киселине, показали су да наведене мембране представљају врло ефикасне адсорбенте којима је могуће остварити високе вредности адсорпционих капацитета за испитиване јоне. Утврђено је да кинетика везивања наведених токсичних јона следи Лагергренов (Lagergren) модел псеудо-другог реда, док се добијени експериментални резултати најбоље описују Ленгмировом (Langmuir) адсорпционом изотермом. Резултати остварени применом Вебер-Морисовог (Weber-Morris) модела указују да унутарчестична дифузија контролише укупну брзину процеса адсорпције. Термодинамички адсорпциони параметри добијени за испитиване мембране указали су на спонтане и ендотермне процесе. Подаци добијени употребом модела за предвиђање динамичког понашања мембрана у колони, показали су добро слагање са експерименталним резултатима за проучаване параметре процеса. Представљени резултати указују на значајну ефикасност магнетитом модификоване целулозне хибридне мембране у уклањању катјона у проточном систему, док је модификована целулозна мембрана са додатком епокси лигнина и танинске киселине показала високу ефикасност у уклањању оксианјона у проточном систему.

Резултати десорпције показали су да је постигнут успех у смислу унапређења ефикасности регенерације, применом поступка оптимизације десорпционих параметара као што су тип регенератора, концентрација и време рада. Осим могуће вишеструке употребе мембрана у адсорпционо-десорпционим циклусима, применом одговарајућег третмана након десорпције, добијена је вода физичко-хемијских својстава која су у складу са прописаном националном регулативом. Резултати тестова десорпције токсичних јона су показали да се мембране након коришћења могу безбедно одложити као еколошки прихватљив материјал. Резултати семиемпиријских квантно-хемијских прорачуна значајно су допринели анализи и разумевању неспецифичних и специфичних интеракција између адсорбената и адсорбата и разумевању њиховог доприноса укупном механизму везивања. Испитивањем капацитета уклањања боја (метил оранж, метиленско плаво, реактив црна 5 и директ црвена 80) и применом теорије функционала густине (Density Functional Theory – DFT) заједно са прорачунима молекулског електростатичког потенцијала и поља молекулских интеракција, описана је веза између перформанси адсорпције и доприноса адсорбат/адсорбент интеракција. Израчунате су енталпије везе на PM7 семиемпиријском нивоу теорије заједно са диполним моментом и енергетском разликом између HOMO и LUMO орбитала, чиме је омогућен увид у начин везивања испитиваних токсичних јона за мембране. Одређени кинетички параметри процеса у вишекомпонентним системима показали су да произведене мембране немају високу селективност, али да поседују високу ефикасност у уклањању катјона и оксианјона из водених раствора.

У поглављу **Закључак**, сумирани су, сажето и јасно, сви добијени резултати са посебним освртом на њихов научни значај и потенцијалну примену.

Поглавље **Литература** садржи литературне наводе који су релевантни за истраживања приказана у овој тези.

3. ОЦЕНА ДИСЕРТАЦИЈЕ

3.1. Савременост и оригиналност

Истраживања приказана у докторској дисертацији Јоване М. Перендија су оригинална и у потпуности усклађена са савременим истраживањима и потребама.

Присуство загађујућих супстанци у води је проблем светских размера чије је решење постало велики изазов за научнике. Издвајање токсичних јона из водених раствора зависи од њихове мобилности, а нарочито од хемијског облика у коме се налазе. Услед континуираног погоршања квалитета вода и постојаног нивоа контаминације, бројна научна истраживања усмерена су ка проналажењу ефикасних, еколошки прихватљивих решења којим би се остварило смањење концентрације токсичних јона у води на минимум или концентрисање истих ради аналитичких одређивања. Адсорпција је једна од метода које се користе у издвајању токсичних јона из водених раствора, а њене предности огледају се у постизању добре реверзибилности и селективности процеса. У новијој пракси се адсорпција најчешће везује за употребу природно доступних материјала и наночестица који захваљујући развијеној специфичној површини, порозности и великом броју функционалних група доприносе постизању значајнијих адсорпционих капацитета при уклањању токсичних јона из водених раствора. Поред тога, бројна научна истраживања усмерена су и ка развоју нових, у технолошком смислу одрживих материјала. Последњих година значајан обим истраживања посвећен је процесима биосорпције применом адсорбената природног порекла. Међу адсорбентима ове групе изузетно су атрактивни целулозни материјали, као и лигнин, танинска киселина и дијатомејска земља добијени из обновљивих извора, чија употреба представља добру алтернативу конвенционалним материјалима који се користе за уклањање токсичних јона из водених раствора. Ови материјали могу имати добре адсорпционе карактеристике, доступни су у великим количинама, јефтине су и често се јављају као отпадни материјал. Употребом таквих материјала значајно се доприноси очувању животне средине. Као материјал, целулоза је изузетно пожељна сировина захваљујући биоразградивости, обновљивости и биокомпатибилности. Целулоза поред карактеристичних својстава као што су хидрофилност, добра механичка својства и нетоксичност, поседује и потенцијал да се употреби као адсорбент јер се једноставно може хемијски модификовати и безбедно одложити након употребе. Из набројаних разлога, пожељно је велике количине целулозне сировине доступне из различитих извора, употребити заједно са другим материјалима природног порекла за добијање адсорбената којим ће се вршити издвајање супстанци на нивоу трагова из водених раствора, међу којима су и различити токсични јони.

Истраживања спроведена у оквиру ове тезе била су усмерена управо ка оптимизацији модификације целулозног материјала која ће допринети унапређењу адсорпционих својстава синтетисаних мембрана. Резултати проистекли из ове тезе јасно су доказали значај употребе целулозе заједно са другим природним материјалима. Резултати сведоче и о уложеном напору да се развије ефикасна метода десорпције уз третман воде из адсорпционо-десорпционих циклуса, а затим да се безбедно одложе употребљени адсорбенти. Оригиналност ове дисертације се огледа у синтези нових биосорбената којима се остварује већи адсорпциони капацитет и могућност поновне употребе, уз допринос у очувању животне средине.

3.2. Осврт на референтну и коришћену литературу

У докторској дисертацији цитирано је 247 литературних навода од којих већина припада међународним часописима највишег ранга што потврђује актуелност истраживања у испитиваној области. Током израде докторске дисертације, детаљно су анализирани и

дискутовани најновији литератури подаци у вези са применом целулозе у поступку адсорпције и значају њене употребе као адсорбента. Такође, детаљно је разматрана и савремена литература у вези са новим методама модификација целулозе и њеним комбиновањем са другим природним материјалима (дијатомејска земља, лигнин и танинска киселина), као и оксидима гвожђа и њиховим оксихидроксидима, са циљем унапређења адсорпционих својстава мембрана. На основу закључака који су изведени прегледом литературе извршено је планирање експерименталног рада, карактеризација добијених материјала, анализа и дискусија добијених резултата, као и извођење коначних закључака. На основу образложења теме докторске дисертације и приказа коришћене литературе, може се закључити да кандидаткиња добро познаје области које су предмет истраживања као и актуелно стање у областима истраживања у оквиру ове докторске дисертације.

3.3. Опис и адекватност примењених научних метода

У оквиру ове докторске дисертације, коришћене су одговарајуће, оригиналне или нове методе за синтезу адсорбената, полазећи од целулозе, као и савремене експерименталне технике за карактеризацију целулозних влакана, функционализованих материјала и мембрана.

У првом делу истраживања, оптимизовани су поступци модификације целулозе и синтезе мембрана применом Д-оптималног дизајна методе одзивних површина. Осим тога, примењене су одговарајуће методе добијања адсорпционих материјала у форми мембране, полазећи од модификоване целулозе, чиме је постигнуто да адсорбенти буду примењиви у проточном систему.

Мембране су најпре окарактерисане одређивањем механичких својстава у циљу испитивања утицаја примењених модификација на чврстоћу материјала, а потом термичком анализом како би се испитала термичка својства узорака. Структурна и морфолошка карактеризација добијених адсорбената извршена је применом скенирајуће електронске микроскопије (SEM), инфрацрвене спектрометрије са Фуријеовом трансформацијом (FT-IR), као и применом FT-Raman спектрометријске методе, како би се пратило увођење површинских функционалних група, односно успешност модификација материјала. Структурна анализа оксида гвожђа, њихових хидратисаних облика и хибридне целулозне мембране извршена је применом рентгенске структурне анализе (eng. X-ray diffraction, XRD). Софтвер Image-Pro Plus 6.0 је коришћен за добијање статистичких података за пречник влакана и порозност, који су одређени и експерименталним путем ради поређења резултата. Нови материјали су окарактерисани одређивањем тачке нултог наелектрисања. Концентрација аминокиселина, епокси и карбоксилних група на површини модификованог материјала је одређена стандардним методама титрације. Концентрације јона метала и оксианјона у раствору измерене су применом атомске апсорпционе спектрометрије (AAS). Концентрације боја у раствору израчунате су праћењем промене апсорбанце применом ултраљубичасте/видљиве спектроскопије (UV/Vis). На основу ових мерења израчунате су вредности промене концентрације, адсорпционог капацитета и степена уклањања јона метала, оксианјона и боја у зависности од времена трајања адсорпције. Резултати добијени коришћењем програмског пакета Visual MINTEQ су коришћени за анализу утицаја различитих параметара и присутних јона у води на процес расподеле и адсорпције, као и поређење са експерименталним резултатима. Интеракција између адсорбата и адсорбента у стању равнотеже испитиваног система, описана је применом адсорпционих изотерми које директно илуструју услове на којима се остварују највећи адсорпциони капацитети. У описивању процеса адсорпције за добијене материјале коришћени су следећи модели: Ленгмир (Langmuir), Фројндлих (Freundlich), Дубинин-Радушкевич (Dubinin–Radushkevich) и Темкин (Temkin). Да би се стекао увид у

адсорпциони механизам јона метала и оксианјона, и дефинисали потенцијални контролни кораци који би могли представљати дифузиони транспорт масе или хемијску реакцију, у раду су примењени кинетички модели: модел псеудо-првог реда (Lagergren), модел псеудо-другог реда (Ho-McKay) и једначина другог реда, као и модели адсорпционе дифузије: једначина линеарне покретачке силе за течни филм, једначина дифузионог преноса масе за течни филм, дифузиони модел на хомогеној чврстој подлози, параболични или Вебер-Морисов (Weber-Morris) модел, Дунвалд-Вагнеров (Dunwald-Wagner) модел и модел дифузије на хомогеној површини (HSDM). Топлотни ефекат процеса адсорпције за добијене мембране процењен је на основу резултата адсорпционих експеримената добијених на температурама 25, 35 и 45 °C. Применом Вант Хофових (Van't Hoff) једначина израчунате су вредности промене стандардне Гибсове слободне енергије (ΔG°), енталпије (ΔH°) и ентропије (ΔS°) процеса. За процену ефикасности адсорпције и примењивости адсорбента у проточном систему, коришћени су Јун-Нелсонов (Yoon-Nelson), Бохарт-Адамсов (Bohart-Adams), Кларков (Clark) и Модификовани модел доза-одзив (Modified dose-response model). У циљу изучавања механизма адсорпције квантитативна анализа молекулске површине урађена је употребом програма Multiwfn 3.7. Мапе електростатичког потенцијала су приказане у програму VMD 1.9.3. Процент поларне површине израчунат је у програму Vega 3.1.1. Поља молекулских интеракција (MIF) израчуната су у програму Pentacle 1.06, како би се окарактерисале интеракције између адсорбента и испитиваних адсорбата. Семиемпиријски квантно-хемијски прорачуни допринели су анализи неспецифичних и специфичних интеракција између адсорбената и адсорбата и њиховом доприносу укупном механизму везивања. Са циљем унапређења ефикасности регенерације извршена је оптимизација десорпционих параметара (тип регенератора, концентрација и време рада).

3.4. Применљивост остварених резултата

На основу до сада објављених резултата из области истраживања, као и резултата проистеклих из ове докторске дисертације, може се закључити да је остварен значајан научни допринос у области примене целулозе као биоразградиве и обновљиве сировине за синтезу нових врста адсорбената који се користе за уклањање токсичних јона из водених раствора.

Резултати ове докторске дисертације указују да се материјали на бази модификоване целулозе уз употребу дијатомејске земље, лигнина, танинске киселине и оксида гвожђа могу применити као еколошки прихватљиви адсорбенти којима се остварује значајно смањење концентрације токсичних јона у воденим растворима. Мембране унапређених адсорпционих својстава применљиве су у поступцима уклањања токсичних јона у шаржном и проточном систему. Применом синтетисаних мембрана може се остварити одређени број адсорпционо-десорпционих циклуса, што заједно са ефикасном регенерацијом и третманом настале воде даје допринос у очувању животне средине. Синтетисане мембране имају велики потенцијал за претконцентрисање трагова токсичних јона из воде пре аналитичких испитивања.

Коначно, значај резултата истраживања ове докторске дисертације огледа се и у чињеници да су објављени у врхунским међународним часописима.

3.5. Оцена достигнутих способности кандидата за самостални научни рад

На основу досадашњих истраживачких активности кандидат Јована М. Перендија је показала заинтересованост, стручност и смисао за рад у научноистраживачкој области. Посебно се истиче њена креативност и самосталност у реализацији идеја и закључака везаних, како за тему докторске дисертације, тако и за друге области истраживања које

се реализују у Институту за хемију, технологију и металургију Универзитета у Београду, у Центру за екологију и техноекономику.

Јована М. Перендија је до сада из области истраживања која су директно повезана са темом докторске дисертације објавила два рада у врхунским међународним часописима (M21), један рад у часопису националног значаја (M53) и два саопштења на скуповима међународног (M34) и националног значаја (M64).

4. ОСТВАРЕНИ НАУЧНИ ДОПРИНОС

4.1. Приказ остварених научних доприноса

У оквиру ове докторске дисертације остварени су следећи научни доприноси:

- Оптимизовани су поступци за добијање нових еколошки прихватљивих и економски исплативих адсорбената на бази модификоване целулозе, дијатомејске земље, лигнина и танинске киселине, са побољшаним адсорпционим својствима у процесу уклањања јона метала, Pb^{2+} и Ni^{2+} , и оксианјона, As(V) и Cr(VI), из водених раствора,
- развијене су методе за добијање функционализованих целулозних влакана и лигнина, као и њиховог коришћења у поступцима добијања адсорбената у форми мембране,
- нови адсорбенти детаљно су окарактерисани савременим екперименталним техникама,
- детаљно је испитана примена добијених мембрана у процесима адсорпције и десорпције у шаржном и проточном систему,
- детаљно је испитана кинетика и термодинамика испитиваних процеса,
- дат је допринос сазнањима о међусобном утицају својстава материјала и параметара процеса на ефикасност уклањања јона метала и оксианјона из водених раствора,
- семиемпиријски квантно-хемијски прорачуни значајно су допринели анализи неспецифичних и специфичних интеракција између адсорбената и адсорбата и разумевању њиховог доприноса укупном механизму везивања,
- оптимизовани су десорпциони параметри ради унапређења ефикасности поступка регенерације,
- детаљно је испитан поступак таложења јона метала, Pb^{2+} и Ni^{2+} , и оксианјона, As(V) и Cr(VI) из воде настале након десорпционих циклуса,
- дат је допринос проширењу знања о могућностима примене модификованих целулозних материјала у процесима адсорпције у вишекомпонентним системима.

4.2. Критичка анализа резултата истраживања

Истраживања обухваћена овом докторском дисертацијом осмишљена су на основу јасно дефинисаних циљева и претходне детаљне анализе литературних података релевантних за област истраживања. Методе коришћене у изради ове докторске дисертације у складу су са савременим методама. Остварени научни доприноси наведени у тачки 4.1. представљају унапређење научних знања у поређењу са постојећим сазнањима јер су синтетисани нови адсорбенти у форми мембране, ефикасни у уклањању токсичних јона из водених раствора. Синтетисани адсорбенти на бази модификоване целулозе су не само ефикасни, већ и еколошки прихватљиви и економски исплативи, јер се заснивају на обновљивом ресурсу као што је целулоза. Поред развоја адсорбената за уклањање катјона и оксианјона из водених раствора, посебна пажња је посвећена ефикасности десорпције и третману воде настале након узастопних адсорпционо-десорпционих циклуса. На овај начин дат је допринос очувању животне средине. Коначно, научни доприноси докторске дисертације огледају се и у томе што ова теза пружа могућност за наставак истраживања у области

даљег развоја и примене модификованих целулозних мембрана у процесима адсорпције других токсичних јона и загађујућих супстанци из водених раствора.

4.3. Верификација научних доприноса

Категорија M21:

1. **Perendija, J.**, Veličković, Z., Cvijetić, I., Rusmirović, J., Ugrinović, V., Marinković, A., Onjia, A.: Batch and column adsorption of cations, oxyanions and dyes on a magnetite modified cellulose-based membrane, *Cellulose*, vol. 27, no. 14, pp. 8215–8235, 2020 (**IF=4.210**) (ISSN:1572-882X) <https://doi.org/10.1007/s10570-020-03352-x>

2. **Perendija, J.**, Veličković, Z., Cvijetić, I., Lević, S., Marinković, A., Milošević, M., Onjia, A.: Bio-membrane based on Modified Cellulose, Lignin, and Tannic acid for cation and oxyanion removal: experimental and theoretical study, *Process Safety and Environmental Protection*, vol. 147, pp.609-625, 2021 (**IF=4.966**) (ISSN: 0957-5820) <https://doi.org/10.1016/j.psep.2020.12.027>

Категорија M34:

1. **Perendija, J.**, Marinković, A., Popović, M., Milošević, D., Ljubić, V., Milošević, M., Vasiljević, Lj.: "Bio-renewable membranes based on modified cellulose, lignin, and tannic acid for difenoconazole and thiophanate-methyl removal", *7th International congress, Engineering, environment and materials in process industry EEM2021*, 17-19 March, Jahorina, Republic of Srpska, BiH, 2021., p. 69. (ISBN 978-99955-81-38-1).

Категорија M53:

1. **Perendija, J.**, Rusmirović, J., Đolić, M., Karanac, M., Milošević, M., Vidović, M., Marinković, A.: "Adsorpcione karakteristike Fe₃O₄ funkcionalizovanih membrana na bazi celuloze/diatomita za uklanjanje Pb²⁺ jona iz vodenih rastvora", *Procesna tehnika*, 30 (2), str. 14-16, 2018. (ISSN 2217-2319).

Категорија M64:

1. **Perendija, J.**, Milošević, D., Bugarčić, M., Marinković, A.: "Removal of hexavalent chromium Cr(VI) from aqueous solutions using cellulose-magnetite membrane CelMag- M", *7th Conference of the Young Chemists of Serbia*, 2nd November, Belgrade, Serbia, 2019., p. 146. (ISBN 978-86-7132-076-4).

5. ПРОВЕРА ОРИГИНАЛНОСТИ ДОКТОРСКЕ ДИСЕРТАЦИЈЕ

На основу Правилника о поступку провере оригиналности докторских дисертација које се бране на Универзитету у Београду, коришћењем програма iThenticate извршена је провера оригиналности докторске дисертације кандидата Јоване М. Перендија, под називом „Уклањање токсичних јона из водених раствора применом адсорбената на бази модификоване целулозе“.

Извештај који садржи резултате провере оригиналности ментор је добио дана 12.04.2021. Утврђени проценат подударности је 8%. Овај степен подударности последица је цитата, односно употребе стручних термина и навођења дефиниција различитих појмова и објашњења параметара који се налазе у релацијама наведеним у тези. Део подударности се односи на претходно публиковане резултате докторандових истраживања, који су проистекли из његове дисертације, што је у складу са чланом 9. Правилника.

На основу свега изнетог, а у складу са чланом 8. став 2. Правилника о поступку провере оригиналности докторских дисертација које се бране на Универзитету у Београду, изјављујемо да извештај указује на оригиналност докторске дисертације, те се прописани поступак припреме за њену одбрану може наставити (позитивна оцена).

6. ЗАКЉУЧАК И ПРЕДЛОГ

Истраживања у оквиру ове докторске дисертације припадају научној области Хемијске науке за коју је Технолошко-металуршки факултет, Универзитета у Београду, матична установа. Ментор ове докторске дисертације је др Антоније Оњиа, ванредни професор Технолошко-металуршког факултета Универзитета у Београду. На основу изнетих података Комисија сматра да су предмет, циљеви, методе, актуелност и значај докторске дисертације кандидата Јоване М. Перендија, јасно дефинисани и научно засновани. Ова дисертација даје значајан горе наведен научни допринос научној области Хемијских наука што је потврђено и објављивањем радова проистеклих из резултата ове докторске дисертације у врхунским међународним научним часописима, као и презентовањем резултата на скуповима међународног и националног значаја. Имајући у виду квалитет, обим и научни допринос постигнутих резултата, Комисија са задовољством предлаже Наставно-научном већу Технолошко-металуршког факултета Универзитета у Београду да овај Реферат прихвати и да га заједно са докторском дисертацијом под насловом „Уклањање токсичних јона из водених раствора применом адсорбената на бази модификоване целулозе“ кандидата Јоване М. Перендија, преда на увид јавности и упути на коначно усвајање Већу научних области природних наука Универзитета у Београду.

У Београду, 14.04.2021.

ЧЛАНОВИ КОМИСИЈЕ

.....
др Антоније Оњиа, ванредни професор
Универзитет у Београду, Технолошко-металуршки факултет

.....
др Александар Маринковић, ванредни професор
Универзитет у Београду, Технолошко-металуршки факултет

.....
др Невена Прлаиновић, доцент
Универзитет у Београду, Технолошко-металуршки факултет

.....
др Александра Настасовић, научни саветник
Универзитет у Београду, Институт за хемију, технологију и металургију

.....
др Злате Величковић, ванредни професор
Универзитет одбране, Војна академија