

Природно-математички факултет

ИЗВЕШТАЈ О ОЦЕНИ ДОКТОРСKE ДИСЕРТАЦИЈЕ

I ПОДАЦИ О КОМИСИЈИ
<p>1. Датум и орган који је именовано комисију</p> <p>Наставно-научно веће Природно-математичког факултета у Новом Саду на 22. седници одржаној 17.11.2016. године именовало је Комисију за оцену и одбрану докторске дисертације под насловом "Адсорпционо понашање одабраних органских ксенобиотика на сорбентима релевантним за третман вода" кандидата Аните Леовац Маћерак за стицање стручног назива Доктор наука-науке о заштити животне средине.</p> <p>2. Састав комисије са назнаком имена и презимена сваког члана, звања, назива уже научне области за коју је изабран у звање, датума избора у звање и назив факултета, установе у којој је члан комисије запослен:</p> <p>1. Др Божо Далмација, редовни професор, ужа научна област Хемија (Хемијска технологија и Заштита околине), изабран 18.03.1996. године, Природно-математички факултет, Нови Сад, – председник</p> <p>2. Др Ивана Иванчев-Тумбас, редовни професор, ужа научна област Заштита животне средине, изабрана 03.12.2008. године, Природно-математички факултет, Нови Сад - менторка</p> <p>3. Др Јелена Тричковић, ванредни професор, ужа научна област Физичка хемија, изабрана 01.02.2015. године, Природно-математички факултет, Нови Сад - члан</p> <p>4. Др Александра Тубић, доцент, ужа научна област Заштита животне средине, изабрана 01.01.2013. године, Природно-математички факултет, Нови Сад - члан</p> <p>5. Др Марина Шћибан, редовни професор, ужа научна област Биотехнологија, изабрана 13.02.2014. године, Технолошки факултет Нови Сад, Нови Сад - члан</p>
II ПОДАЦИ О КАНДИДАТУ
<p>1. Име, име једног родитеља, презиме: Анита, Станимир, Леовац Маћерак</p> <p>2. Датум рођења, општина, држава: 12.06.1986. Пљевља, Црна Гора</p> <p>3. Назив факултета, назив студијског програма дипломских академских студија – мастер и стечени стручни назив</p> <ul style="list-style-type: none"> • Природно-математички факултет, смер Дипломирани хемичар – инжењер контроле квалитета и менаџмента животне средине, стечени стручни назив Дипломирани хемичар-инжењер контроле квалитета и менаџмента животне средине • Природно-математички факултет, студијски програм Мастер академске студије хемије, стечени академски назив – Мастер хемичар. <p>4. Година уписа на докторске студије и назив студијског програма докторских студија 2010. година, Докторске академске студије заштите животне средине</p> <p>5. Назив факултета, назив магистарске тезе, научна област и датум одбране: -</p> <p>6. Научна област из које је стечено академско звање магистра наука: -</p>
III НАСЛОВ ДОКТОРСKE ДИСЕРТАЦИЈЕ:
<p>"Адсорпционо понашање одабраних органских ксенобиотика на сорбентима релевантним</p>

IV ПРЕГЛЕД ДОКТОРСКЕ ДИСЕРТАЦИЈЕ:

Докторска дисертација припада научној области Заштита животне средине, дисциплини Хемија животне средине. Написана је на српском језику, латиничним писмом, са кључном документацијском информацијом на српском и енглеском језику. Текст је написан на 237 страна, а садржи 32 слике, 36 табела, 7 прилога и 223 литературна навода. Организован је у шест поглавља и посебно датим прилозима: Увод - 3 стране, Теоријски део - 53 стране, Експериментални део - 22 стране, Резултати и дискусија - 86 страна, Закључак – 9 страна, Литература – 27 страна, Прилози (I-VII)-32 стране. Након прилога следи биографија кандидаткиње и без нумерације поменути кључна документацијска информација.

V ВРЕДНОВАЊЕ ПОЈЕДИНИХ ДЕЛОВА ДОКТОРСКЕ ДИСЕРТАЦИЈЕ:

Увод. У овом поглављу је укратко дат приказ стања у истраживачкој области који се односи на појаву ксенобиотика у водама и значај сорпционих процеса за њихово уклањање у пречишћавању воде за пиће. Посебно су поменути изазови који стоје пред данашњим научним истраживањима у свету и у том контексту представљени циљеви истраживања у оквиру дисертације, од општег ка специфичним. Представљен је одабир три релевантна хербицида, као представника ксенобиотика. Из општег циља се види да рад на дисертацији обухвата изучавање сорпционог понашања атразина, трифлуралина и алахлора и да се очекује добијање података корисних за приоритизацију са аспекта третмана вода. Специфично, истраживање је усмерено на водене матриксе локалне важности и квантификавање и боље разумевање сорпционог понашања одабраних ксенобиотика на седименту Дунава, органоглинама и активним угљевима, као и утврђивање утицаја растворених органских материја у природним или делимично измењеним природним матриксама, за које је претпостављено да може бити значајан.

Општи део. У овом поглављу дат је детаљан и актуелан преглед релевантне литературе са око 200 референци за област и методологију истраживања. У првом потпоглављу *Органски ксенобиотици у води* представљен је преглед садржаја и врсте органских ксенобиотика у различитим воденим срединама, пре и после пречишћавања, како би се указало на значајност теме којом се бави теза. Поред података о поменути хербицидима, прикупљени су и представљени подаци и о другим ксенобиотицима. У другом потпоглављу, *Сорпциони процеси у третману вода*, представљене су врсте сорбената (природни и индустријски са посебним акцентом на активан угаљ) и њихово место и улога у процесима прераде вода. Дат је преглед резултата других аутора који се односе на ефикасност уклањања ксенобиотика из водених средина и различите адсорпционе параметре чије су вредности добијене под дефинисаним условима. Посебне целине текста су посвећене проблематици интеракција органских ксенобиотика и геосорбената, односно активних угљева које утичу на претходно поменути адсорпционе параметре и ефикасност процеса сорпције. Дат је преглед релевантних механизма који учествују у сорпцији и посебно обрађена литература везана за истраживања утицаја свеprisутних природних органских материја у воденим срединама на сорпцију ксенобиотика. У трећем потпоглављу, *Математички модели за описивање сорпције*, представљени су нелинеарни и линеарни модел за сорпцију у равнотежним условима и дате неопходне теоријске основе описа адсорпције из вишекомпонентних система, сорпционе кинетике, као и транспорта полутаната кроз материјал аквифера који су кориштени даље у раду за опис испитиваних система.

Експериментални део. У оквиру плана истраживања који је био усмерен на одабир и карактеризацију испитиваних сорбената и водених матрикса, испитивања сорпције и десорпције органских ксенобиотика на геосорбентима (седиментима и органоглинама) и испитивања адсорпције органских ксенобиотика на активним угљевима у праху, представљени су детаљно специфични циљеви докторске дисертације у сваком од наведених сегмената. Након тога, детаљно је у оквиру четири потпоглавља описан експериментални рад. У првом делу су дате карактеристике одабраних органских ксенобиотика релевантне за понашање у сорпционим процесима, набројани су кориштени сорбенти (природни седимент, модел седимент, две врсте органоглина, и три типа активних угљева) и дата објашњења о њиховој припреми у лабораторији, у случају модел седимента и органоглина. Објашњени су типови кориштених водених матрикса (синтетички водени матрикс за експерименте сорпције

на геосорбентима и природна површинска и подземна вода, које су обе у случају експеримената са угљем биле подвргнуте додатно и озонизацији у циљу измене особина природно присутних органских материја при симулацији процеса прераде воде за пиће). У другом делу су описане методе извођења сорпционих експеримената (шаржни тестови на геосорбентима, колонски тестови на седименту и адсорпциони тестови на активном угљу у праху). Циљ ових експеримената је био добити податке о адсорпционим параметрима на геосорбентима, о ефикасности и унутарчестичном преносу масе код угљева, као и о адсорпционом понашању природних органских материја на угљевима. Сви добијени подаци су даље кориштени за међусобна поређења понашања хербицида у условима различитих сорбената и матрикса. У трећем потпоглављу су описане физичко-хемијске методе карактеризације сорбената и воде које су примењене у раду, засноване на стандардним и нестандартним методама (LC/OCD и XAD фракционација за добијање више информација о структури природних органских материја и GC/MS квалитативна анализа површинске воде пре и после озонизације). У четвртном потпоглављу дат је преглед метода за анализу података сходно различитим врстама експеримената - употреба Фројндлиховог модела за обраду изотерми, рачун ефикасности уклањања ксенобиотика, примена модела KIN (верзија 3.0), AdsAna (верзија 1.3) и TransMod (верзија 2.2). Комисија закључује да су изведени експерименти и коришћене методе у раду у складу са постављеним циљевима докторске дисертације. Мишљења је да је дат врло јасан и детаљан опис свих процедура што омогућава поновљивост резултата и експеримената на задовољавајућем нивоу и у оквирима квалитета који се може наћи у савременој релевантној светској литератури.

Резултати и дискусија. Комисија сматра да је поглавље у коме су представљени и продискутовани сви резултати у складу са постављеним циљевима тезе. Резултати су прегледно описани, критички дискутовани и поређени са релевантном светском литературом. Организовани су у четири целине. У прве две дати су резултати карактеризације сорбената и матрикса који су били неопходни за дискусију резултата представљених у трећем (*Сорпционо понашање хербицида на геосорбентима*) и четвртном потпоглављу (*Адсорпционо понашање одабраних хербицида и природних органских материја на активном угљу у праху*). Изучавање сорпционог понашања хербицида на геосорбентима урађено је за седименте и органоглине помоћу шаржних сорпционих тестова којима је претходило тестирање времена уравнотежавања. Добијени адсорпциони параметри су детаљно дискутовани са аспекта утицаја карактеристика геосорбента (са посебним нагласком на могуће специфичне интеракције хербицида и сорбената) и утицаја карактеристика воденог матрикса на сорпционо понашање одабраних ксенобиотика (пре свега садржаја растворених природних органских материја за које је потврђен значајан утицај). Анализиран је феномен сорпционо-десорпционе хистерезе који показује привидну иреверзибилност сорпционог процеса. У колонским тестовима упоређено је сорпционо понашање хербицида у синтетичком и природним воденим матриксима и представљене процењене вредности фактора ретардације добијене у колонским тестовима и израчунате на основу статичких експеримената, које су даље поређене и на основу којих су дати закључци значајни за приоритизацију коришћених хербицида са аспекта заштите изворишта природним сорпционим процесима. У оквиру четвртог потпоглавља прво су представљени резултати шаржних сорпционих тестова за хербициде на активном угљу у праху у виду ефикасности коју су угљеви испољили за уклањање ксенобиотика из воде у реалном времену контакта од 1 сата и то у условима различитих природних матрикса, површинске и подземне воде, пре и после озонизације. Ови резултати су исцрпно дискутовани у смислу доношења закључка који би били значајни за праксу на локално специфичном матриксу. Саставни део овог потпоглавља је дискусија о релативним променама кинетичког параметра везаном за унутарчестични транспорт масе који је процењен помоћу софтвера KIN (3.0) у циљу међусобног поређења угљева у различитим матриксима, а на основу псеудо-равнотежних параметара добијених шаржним експериментима. Указано је на прелиминарни карактер ових резултата и потребу за даљим истраживањима. Друга текстуална целина се бави резултатима шаржних сорпционих тестова за природне органске материје у површинској и подземној води и адсорпционом анализом која је по први пут урађена за локалне услове, са објашњеним ограничењима условног разматрања у сврхе међусобног поређења резултата мерења.

Закључак. У овом поглављу су систематизовани закључци свих резултата који произилазе из њихове дискусије. На основу наведеног Комисија закључује да су остварени планирани циљеви истраживања у оквиру докторске дисертације.

Литература. У овом поглављу наведена је цитирана литература (223 референце). Цитирање је урађено на одговарајући начин, а изабране референце су значајне и актуелне, примерене тематици којом се докторска дисертација бави. Познавање свих ових референци омогућило је кандидаткињи квалитетно истраживање у оквиру тезе, а представља и полазну подлогу за даљи квалитетан научни рад.

Прилози. Укупно седам прилога на 32 стране садрже табеле и графике са резултатима за квалитативне GC/MS анализе површинске воде, за адсорпционе параметре за хербициде на геосорбентима, за коефицијенте корелације између K_d вредности и садржаја органског угљеника у геосорбентима, за промену концентрације хербицида на активним угљевима с временом, резултате шаржних сорпционих тестова на активним угљевима за хербициде и органске материје, резултате адсорпционе анализе. Ови примарни подаци су даље обрађивани у сврхе представљања у претходним деловима тезе са циљем да се додатно не оптерећује текст дискусије резултата.

VI СПИСАК НАУЧНИХ И СТРУЧНИХ РАДОВА КОЈИ СУ ОБЈАВЉЕНИ ИЛИ ПРИХВАЋЕНИ ЗА ОБЈАВЉИВАЊЕ НА ОСНОВУ РЕЗУЛТАТА ИСТРАЖИВАЊА У ОКВИРУ РАДА НА ДОКТОРСКОЈ ДИСЕРТАЦИЈИ

1. **Leovac A.,** Vasyukova E., Ivančev-Tumbas I., Uhl W., Kragulj Isakovski M., Tričković J., Kerkez Đ., Dalmacija B. (2015) Sorption of atrazine, alachlor and trifluralin from water onto different geosorbents, RSC Advances, 5, 8122-8133, DOI: 10.1039/C4RA03886J, ISSN: 2046-2069 **M21, према петогодишњем импакт фактору IF 3,485 или за 2015 M22 (ИФ 3,289).**
2. **Leovac Mađerak A.,** Ivančev-Tumbas I., Kragulj Isakovski M., Tričković J., Kerkez Đ., Dalmacija B. (2016) Sorpciono-desorpciono ponašanje odabranih prioritetnih supstanci na sedimentu, 46. Otpadne vode, komunalni čvrsti otpad i opasan otpad, Vršac, 13-15 April, 2016, pp.27-31 ISBN 978-86-82931-77-5, **M61**
3. **Leovac Mađerak A.,** Ivančev-Tumbas I., Kerkez Đ., Molnar-Jazić J., Bogunović M. (2015) Adsorption of trifluralin, alachlor and atrazine from different water matrices onto powdered activated carbons (PACs), 15th EuChemS International Conference on Chemistry and Environment, ICCE, Leipzig, 20-24 September, 2015, pp.135-136, **M34**
4. **Leovac A.,** Kragulj M., Ilić G., Tričković J., Dalmacija B., Ivančev-Tumbas I. (2014) Investigation of sorption behaviour of selected herbicides in different water matrices, 80. Jahrestagung der Wasserchemischen Gesellschaft, Haltern am See, 26-28 May, 2014 ISBN 978-3-936028-83-6, **M33**
5. **Leovac A.,** Kragulj, M., Tričković J., Uhl W., Vasyukova E., Dalmacija B., Ivančev-Tumbas I. (2013) Sorption behaviour of trifluralin and alachlor on selected sorbents in aquatic matrices of different origin, 14th EuChem International Conference on Chemistry and the Environment (ICCE), Barcelona, 25-28 June, 2013, **M34**
6. Tubić A., **Leovac A.,** Molnar J., Krčmar D., Paunović O., Ivančev-Tumbas I. (2013) Characterization of dissolved organic matter from the Danube river before and after ozone oxidation, Book of abstracts, 6th Symposium, Chemistry and Environmental Protection, EnviroChem 2013 with international participation, 21-24.maj, Vršac, Serbia, ISBN 978-86-7132-052-8, **M64**

VII ЗАКЉУЧЦИ ОДНОСНО РЕЗУЛТАТИ ИСТРАЖИВАЊА

Основни циљ ове докторске дисертације је било изучавање сорпционог понашања представника ксенобиотика, три хербицида различите растворљивости, хидрофобности и донорско-акцепторских особина (трифлуралин, алахлор и атразин) који се налазе на листи приоритетних супстанци према Оквирној директиви о водама ЕУ (2000/60/ЕС) на сорбентима релевантним за третман вода. Кориштени су седименти, органоглине и активни угљеви са општим циљем добијања података за приоритизацију са аспекта третмана вода. Специфично, дат је допринос квантификавању и бољем разумевању сорпционог понашања одређивањем релевантних адсорпционих параметара и/или ефикасности уклањања у различитим условима, као и утврђивању утицаја растворених органских материја, у локално важним воденим матриксама за које је претпостављено да он може бити значајан.

На основу детаљно представљених резултата истраживања кандидаткиња, између осталог наводи следеће резултате карактеризације одабраних сорбената:

- За геосорбенте је показано да садржај укупног органског угљеника расте у низу: 0,14, 1,20,

2,20 и 3,92%, за тетраметил-амонијум каолинит (ТМА-К), дунавски седимент (Д), модел седимент (М) и тетраметил-амонијум бентонит (ТМА-Б), редом. Рендгеноструктурном анализом седимената утврђено је да Д седимент има разноврсније оксиде гвожђа, алуминијума и никла у својој структури у односу на модел седимент. С друге стране, дифрактограм ТМА-К органоглине је много богатији у односу на ТМА-Б у погледу садржаја металних оксида.

- Елементална анализа показује да угљеви имају 80-82% угљеника. Резултати специфичне површине и анализе пора указују да угаљ Ц има највећу специфичну површину (1358 м²/г) која је скоро два пута већа од специфичне површине угљева А и Б (734 и 664 м²/г, редом).

На основу резултата анализе водених матрикса нестандартним методама (LC-OCD фракционације и фракционације помоћу смола) и GC/MS анализе кандидаткиња наводи следеће закључке:

- хидрофобна фракција раствореног органског угљеника има већи садржај у подземној (18,9% или 0,886 мг/л) у односу на површинску воду (4,10% или 0,088 мг/л). Хроматограбилни део раствореног органског угљеника је окарактерисан на садржај биополимера, хуминских супстанци, нус-продукте разградње хумина, неутралне компоненте малих молекулских маса и киселине малих молекулских маса. Молекулска маса хуминских супстанци у површинској води (751 г/мол) је незнатно већа од оних у подземној води (707 г/мол). У оба случаја оне припадају групи педогених фулвинских киселина.
- ХАД фракционисање површинске воде у два наврата (март и мај 2012. године) указало је на доминацију хидрофилне фракције раствореног органског угљеника (87% и 78%, редом) у односу на хидрофобну (17% и 22%, редом). Озонизацијом, хидрофилна фракција и даље остаје доминантна са уделом од 90% и 83% редом за два различита узорка (март и мај), у односу на хидрофобну фракцију (10% и 17%).
- Резултати GC/MS скрининга спроведени у два наврата показали су да је скоро исти број једињења детектован у оба узорка површинске воде (19 и 17, редом). Озонизацијом у оба периода добијен је исти број једињења (23) од чега је 13 истих једињења детектовано у два различита узорка.

Из испитивања адсорпције органских ксенобиотика на геосорбентима у шаржним тестовима за седименте и органоглине кандидаткиња закључује следеће:

- На основу K_d вредности добијених у шаржним експериментима, доказано је да су ТМА-Б ($K_d = 10,5 - 483$ л/кг) и модел седимент ($K_d = 16,4 - 761$ л/кг) најефикаснији сорбенти за испитиване хербициде. На дунавском седименту и на ТМА-К вредности K_d биле су у опсезима 4,7 – 233,6 л/кг и 5,7 – 275,1 л/кг, редом. Два сорбента имају највећи садржај укупног органског угљеника, док ТМА-Б има највећу специфичну површину, запремину пора и садржај микропора. Модел седимент има малу специфичну површину, и десет пута мању запремину пора у односу на ТМА-К, али је показао боље сорпционе карактеристике у односу на остала два сорбента, највероватније због високог садржаја угљеника и могућих интеракција полутаната са минералном фазом.
- У синтетичком воденом матриксу, трифлуралин показује већи афинитет према природном седименту у односу на друга два хербицида, која се слично понашају, док код М седимента постоје разлике које прате хидрофилност испитиваних ксенобиотика. Што се тиче органоглина, најизраженија сорпција је такође за трифлуралин. Алахлор и атразин показују сличне сорпционе капацитете на ТМА-К, док је на ТМА-Б, сорпција израженија за алахлор у односу на атразин.
- Корелација између K_d вредности и садржаја укупног органског угљеника ($R^2=0,886$) је била прихватљива једино у случају трифлуралина и синтетичког матрикса при најнижем концентрационом нивоу (0,01 мг/л). Одсуство јасне линеарне корелације између K_d и % укупног органског угљеника упућује на важност интеракција минералне фазе и хербицида.
- У случају седимената нису утврђене корелације K_d са $\log K_{OW}$ вредностима, док су код органоглина утврђене, што упућује на закључак да су хидрофобне интеракције имале више удела у свеукупној сорпцији на органоглинама. K_d / K_{OW} односи су највећи код атразина, у односу на алахлор и трифлуралин, па се претпоставља да атразин највише учествује у успостављању специфичних интеракција због својих донорско-акцепторских особина, док друга два ксенобиотика имају само акцепторске особине.
- Што се тиче утицаја матрикса, резултати показују да су важни и тип и концентрација раствореног органског угљеника у воденој фази за сорпцију хербицида, у зависности од примењеног типа сорбента и концентрационог нивоа сорбата. У зависности од матрикса, на оба седимента, највеће K_d вредности су добијене за трифлуралин, док су K_d вредности за атразин и алахлор биле веома сличне или пак веће за атразин. У случају органоглина,

вредности K_d су расле са порастом $\log K_{ow}$ вредности хербицида на ТМА-К у оба природна матрикса. Када је у питању ТМА-Б, раст K_d вредности са растом $\log K_{ow}$ вредности уочава се у површинском матриксу при $C_e = 0,05$ мг/л и $0,5$ мг/л, и подземном матриксу при највећој равнотежној концентрацији $C_e = 0,5$ мг/л. Највеће K_d вредности (50,8-761,1 л/кг) су добијене за трифлуралин у подземној води са највећим садржајем раствореног органског угљеника (5,9 мг/л) и хуминских супстанци. Међутим, показано је да површински матрикс са мањим садржајем раствореног органског угљеника и хуминских супстанци може да повећа сорпцију алахлора и атразина, посебно на дунавском седименту и ТМА-Б. Овај закључак указује да поређење ефикасности сорбената треба спроводити у природним матриксима јер сорпциони коефицијенти варирају у зависности од концентрације полутаната, типа и садржаја раствореног органског угљеника.

- Испитивањем сорпционо-десорпционе хистерезе у синтетичком матриксу у шаржним експериментима уочено је да се већи индекси хистерезе добијају за седимент (0,56-21,05) у односу на органоглине (0,63-6,88). Трифлуралин је показао израженију хистерезу на модел седименту богатим тресетом и каолином, док су атразин и алахлор имали израженију хистерезу на дунавском седименту, вероватно услед појаве низа различитих интеракција поларних група хербицида и минералне фракције седимента. Изучавањем хистерезе у природним матриксима дошло се до закључка да они утичу на индекс хистерезе који може значајно да се мења у зависности од типа матрикса и концентрације хербицида. У природним матриксима опсеги индекса хистерезе на седиментима се крећу од 0,11 до 15,22, а на органоглинама од 0,11 до 8,34.

Међу закључним разматрањима резултата експеримената у колонским тестовима на природном седименту, кандидаткиња, између осталог наводи следеће:

- Фактор ретардације атразина, добијен моделовањем применом TransMod софтвера, је већи у природним матриксима ($R_d = 54$ и $R_d = 55$ у подземној и површинској води, редом) него у синтетичкој води ($R_d = 40$), али се не разликује за два различита природна матрикса међусобно. Код алахлора нису уочене значајне промене фактора ретардације међу матриксима и они износе 32, 35 и 30 за синтетички, површински и подземни матрикс, редом. Овакви резултати експеримената показују да и алахлор и атразин имају сличну ретардацију, пробијају се кроз слој сорбента много брже од трифлуралина за кога су и измерени највећи сорпциони коефицијенти у статичким условима и који је детектован у елуенту 14% од почетне концентрације у року од 48 сати. На колонама је симулирани фактор ретардације за атразин нешто већи него код алахлора. Ови резултати су супротни очекивањима на основу хидрофилности ксенобиотика и могу бити резултат управо интеракција са органским материјама које су биле изражене у колонским тестовима, вероватно и више него у шаржним тестовима, где се није појавило повећање R_d вредности у природним матриксима у односу на синтетички матрикс. Без обзира што је алахлор хидрофобнији од атразина, у условима датог матрикса и сорбента испољава сличне (шаржни тестови) или слабије сорпционе карактеристике (колонски тестови) које упућују на мобилност кроз први заштитини слој. Поређењем вредности R_d из колонских експеримената са вредностима процењеним на основу шаржних експеримената, за атразин у синтетичкој води се добија нешто већи фактор ретардације, док је у природним матриксима, он двоструко већи.

На основу резултата истраживања адсорпције органских ксенобиотика и природних органских материја на активним угљевима у праху (два комерцијална угља биљног порекла, означена у даљем тексту са А и Б, и један додатно уситњен комерцијални угаљ пореклом из лигнита као пример који се користи у хибридном процесима, означен у даљем тексту са Ц) кандидаткиња доноси следеће закључке:

- Ефикасност уклањања се кретала у различитим опсезима у зависности од одабраног угља, воденог матрикса и дозе угља. Са дозом угља од 8 и 15 мг/л у површинском матриксу постиже се уклањање хербицида од 37% и 55% за атразин, од 41% и 62% за алахлор и 71% и 85% за трифлуралин на угљу А. Ефикасност уклањања на угљу Б при истим дозама износи 37% и 58% за атразин, 80% и 95% за алахлор и 81% и 87% за трифлуралин. На угљу Ц, проценат уклањања је био 47% и 66% за атразин, 98% и 99% за алахлор и 85% и 92% за трифлуралин, при дозама угља од 8 и 15 мг/л, редом. У подземном матриксу, ефикасност уклањања при дозама 8 и 15 мг/л је износила 28% и 46% за атразин, 35% и 52% за алахлор, и 72% и 92% за трифлуралин на угљу А; на угљу Б - 36% и 56% за атразин, 72% и 76% за алахлор, и 90% и 92% за трифлуралин, за исте дозе; и на угљу Ц - 44% и 63% за атразин, 96% и 98% за алахлор и 83% и 88% за трифлуралин при дозама угља од 8 и 15 мг/л, редом.
- Озонизација матрикса довела је до промена у квалитету органске материје које су се

одразиле на ефикасност адсорпције ксенобиотика. Смањење ефикасности у уклањању трифлуралина и алахлора може бити последица конкуренције са органским материјама или солубилизације новоформираних компоненти, док се у вези са поспешеном адсорпцијом атразина у неким случајевима након озонизације може спекулисати у вези узрока у смислу боље расподеле и сорпције у нове ПОМ превлаке на угљу које се могу евентуално формирати услед озонизације уколико растворени органски угљеник задржи своја адсорпциона својства, али ипак има нешто више поларних група него у неозонираној води. Могуће објашњење да је у неким случајевима угљан ефикаснији у озонираној него у сировој води може се постулирати присуством хидрофилних органских материја које вероватно могу поспешити адсорпцију на честицама угља уколико су довољно добро адсорбабилне, али ступају и у интеракције са одабраним ксенобиотичима. Ова хипотеза је потврђена једним делом резултатима адсорпционе анализе која је по први пут спроведена на локалним матриксама и која је показала да након озонизације у случају површинског матрикса настају средње адсорбабилне фракције за угљеве Б и Ц, док се код угља А повећава знатно удео неадсорбабилне фракције. У подземној води не настаје средње адсорбабилна фракција, али је уочена промена јако адсорбабилне фракције и то у случају активних угљева А и Б њено снижење, док је код угља Ц примећен пораст удела ове фракције.

- Испитивањем кинетике адсорпције процењене су вредности кинетичког параметра везаног за унутарчестични транспорт масе, k_{CA} за све хербициде у четири матрикса. Добијене вредности за унутарчестични коефицијент преноса масе за атразин се мало разликују у зависности од типа угља и матрикса и крећу се од $2,8 \cdot 10^{-4}$ л/с до $6,0 \cdot 10^{-4}$ л/с. Код алахлора се вредности за унутарчестични коефицијент преноса масе налазе у опсегу од $2,0 \cdot 10^{-5}$ до $4,0 \cdot 10^{-4}$ л/с. Код трифлуралина, k_{CA} вредност се налази у опсегу од $4,0 \cdot 10^{-5}$ до $4,0 \cdot 10^{-4}$ л/с у зависности од угља и матрикса.

Везано за адсорпцију природних органских материја на активним угљевима, кандидаткиња износи следећи закључак:

- За комерцијалне активне угљеве у праху, зависно од доба, у површинском матриксу, постигнута је ефикасност уклањања раствореног органског угљеника од 19% и 32% са дозама од 8 и 15 мг/л, редом за ПАЦ А, и са истим дозама за ПАЦ Б од 36% и 57%. ПАЦ Ц је показао сличну ефикасност од 34% и 55% при истим дозама. У подземном матриксу је постигнута ефикасност 37% и 51% на угљу А при 8 и 15 мг/л, на угљу Б 33% и 51% при истим дозама. Код угља Ц је постигнута слична ефикасност (30% и 50%) на испитиваним дозама. Негативан утицај озонизације на ефикасност уклањања раствореног органског угљеника примећен је у летњем периоду у површинском матриксу. Значајне промене код подземног матрикса утврђене су само у три од укупно дванаест мерења.

VIII ОЦЕНА НАЧИНА ПРИКАЗА И ТУМАЧЕЊА РЕЗУЛТАТА ИСТРАЖИВАЊА

На основу прегледа докторске дисертације Комисија сматра да је она јасно структурирана. Обимни резултати су груписани у целине које воде квалитетној дискусији. Резултати истраживања су изузетно добро систематизовани, детаљно дискутовани и поређени са резултатима релевантне научне литературе. Изложени су јасно, илустровани табелама, сликама и прилозима. Тумачења су аргументована, критичка и у складу са савременим знањем у области и дају јасне закључке. На основу наведеног, Комисија даје позитивну оцену приказа и тумачења резултата истраживања.

IX КОНАЧНА ОЦЕНА ДОКТОРСКЕ ДИСЕРТАЦИЈЕ:

1. Да ли је дисертација написана у складу са образложењем наведеним у пријави теме

Дисертација је написана у складу са образложењем наведеним у пријави теме.

2. Да ли дисертација садржи све битне елементе:

Дисертација садржи све битне елементе. Предмет, тема и циљеви су јасно формулисани. Дат је обиман и адекватан преглед истраживања у области. Експериментални рад је детаљно описан, кориштена је савремена методологија и прикупљен велик број података који су одлично систематизовани. Закључци тезе проистичу директно из детаљно и критички дискутованих резултата које је кандидаткиња добила експерименталним радом и систематичко представила.

3. По чему је дисертација оригиналан допринос науци

Комисија сматра да је кандидаткиња дала оригиналан допринос новим фундаменталним знањем везаним за адсорпцију одабраних ксенобиотика. Поређењем резултата урађених адсорпционих тестова добијени су значајни подаци о ефикасности сорбената и механизмима који ту

ефикасност одређују за одабране хербициде. Утврђено је да и тип и концентрација раствореног органског угљеника у воденој фази утичу на сорпцију и тај утицај је квантификован у локално специфичним условима, те је закључено да поређење ефикасности сорбената треба спроводити у природним матриксама. У вези са адсорпцијом на геосорбентима, утврђена је важна улога минералне фракције и донорско-акцепторских особина испитиваних ксенобиотика. У вези са адсорпцијом на угљу, научно значајни су утврђени ефекти процеса озонизације на матрикс који упућују на могућност њиховог коришћења у избору угља у зависности од особина полутаната који се могу наћи у води, како би се оптимизовала технологија у циљу ефикаснијег уклањања ксенобиотика. Значајно је напоменути да су неке од метода кориштене у докторској дисертацији по први пут примењене на локалним матриксама (LC-OCD фракционација и прелиминарна адсорпциона анализа). Добијено знање има и практичан значај у оптимизацији процеса прераде воде за пиће, јер доприноси бољем разумевању судбине и транспорта ксенобиотика у животној средини и процесу прераде воде у локално специфичним условима. На висок квалитет и оригиналност истраживања указује и чињеница да је део резултата публикован у међународном часопису (M21 према петогодишњем импакт фактору) у виду једног научног рада.

4. Недостаци дисертације и њихов утицај на резултат истраживања

Комисија није уочила суштинске недостатке дисертације који би битно утицали на постизање циљева, резултате истраживања и закључке.

X ПРЕДЛОГ:

На основу укупне оцене дисертације, Комисија предлаже да се прихвати позитивна оцена докторске дисертације под називом: „*Адсорпционо понашање одабраних органских ксенобиотика на сорбентима релевантним за третман вода*“ и да се кандидаткињи Анити Леовац Маћерак одобри одбрана.

У Новом Саду, 25. новембра 2016.

др Божо Далмација, редовни професор,
председник комисије

др Ивана Иванчев-Тумбас, редовни професор,
менторка

др Јелена Тричковић, ванредни професор, члан

др Александра Тубић, доцент, члан

др Марина Шћибан, редовни професор, члан