

# УНИВЕРЗИТЕТ У НОВОМ САДУ

## ТЕХНОЛОШКИ ФАКУЛТЕТ НОВИ САД

### ИЗВЕШТАЈ О ОЦЕНИ ДОКТОРСКЕ ДИСЕРТАЦИЈЕ

**-обавезна садржина- свака рубрика мора бити попуњена**

(сви подаци уписују се у одговарајућу рубрику, а назив и место рубрике не могу се мењати или изоставити)

<b>I ПОДАЦИ О КОМИСИЈИ</b>
1. Датум и орган који је именовео комисију 07.07.2017. Наставно-научно веће Технолошког факултета Нови Сад, Универзитет у Новом Саду
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: <ul style="list-style-type: none"><li>- Председник: <b>Горан Стојановић</b>, редовни професор, Електротехника, изабран 21.10.2015., Факултет техничких наука, Универзитет у Новом Саду</li><li>- Ментор/члан: <b>Владимир В. Срдић</b>, редовни професор, Неорганске технологије и материјали, изабран 19.10.2006., Технолошки факултет Нови Сад, Универзитет у Новом Саду</li><li>- Ментор/члан: <b>Жељка Цвејић</b>, ванредни професор, Експериментална физика кондензоване материје, изабрана 20.06.2013., Природно-математички факултет, Универзитет у Новом Саду</li><li>- члан: <b>Марија Милановић</b>, доцент, Инжењерство материјала, изабрана 01.10.2015., Технолошки факултет Нови Сад, Универзитет у Новом Саду</li><li>- члан: <b>Иван Стијеповић</b>, научни сарадник, Техничко-технолошке науке, Технолошко инжењерство, изабран 25.09.2013., Технолошки факултет Нови Сад, Универзитет у Новом Саду</li></ul>
<b>II ПОДАЦИ О КАНДИДАТУ</b>
1. Име, име једног родитеља, презиме: Бранимир, Момчило, Бајац
2. Датум рођења, општина, држава: 24.07.1984. Нови Сад, Србија
3. Назив факултета, назив студијског програма дипломских академских студија – мастер и стечени стручни назив Универзитет у Новом Саду, Технолошки факултет Нови Сад, Инжењерство материјала, дипломирани инжењер технологије
4. Година уписа на докторске студије и назив студијског програма докторских студија 2011, Инжењерство материјала, Технолошки факултет Нови Сад, Универзитет у Новом Саду
5. Назив факултета, назив магистарске тезе, научна област и датум одбране:
6. Научна област из које је стечено академско звање магистра наука: Инжењерство материјала
<b>III НАСЛОВ ДОКТОРСКЕ ДИСЕРТАЦИЈЕ:</b> Синтеза, микроструктура и функционална карактеризација мултифероичних $BaTiO_3/NiFe_2O_4$ вишеслојних танких филмова

#### **IV ПРЕГЛЕД ДОКТОРСКЕ ДИСЕРТАЦИЈЕ:**

Навести кратак садржај са знаком броја страна, поглавља, слика, шема, графикона и сл.

Докторска дисертација дипл. инг Бајац Бранимира је јасно подељена у шест поглавља:

Увод (стр. 1–2),

Теорисјки део (стр. 3–21),

Експериментани део (стр. 22–42),

Резултати (стр. 43–84),

Дискусија (стр. 85–96),

Закључак (стр. 97–99),

Литература (стр. 99–106).

Докторска дисертација кандидата написана је на 106 страна А4 формата. Садржи 65 слика, 4 табеле, 78 литературних навода, уз кључу докумантацију и кратак извод (на српском и енглеском) на почетку.

#### **V ВРЕДНОВАЊЕ ПОЈЕДИНИХ ДЕЛОВА ДОКТОРСКЕ ДИСЕРТАЦИЈЕ:**

У *Уводу*, кандидат Бранимир Бајац, укратко представља значај електричних компонената и микроелектронске индустрије у свету, објашњава појам мултифероичних материјала, типове стурктура танких мултифероичних филмова и њихову потенцијалну примену. Такође, даје и кратак опис система танких мултофероичних филмова на којем су рађена испитивања у овој докторској дисертацији и технике употребљене при синтези и карактеризацији.

У *Теоријском делу* кандидат прво детаљно објашњава кристалну структуру перовскитног баријум титаната и спинелну структуру никл ферита, порекло електричног и магнетног диполног момента, са акцентом на процеса поларизације фeroелектрика и магнетизације феромагнетика. Затим представља једнофазне и вишефазне мултифероике, њихове предности и мане, битан утицај геометријске организације фаза у систему вишефазног мултифероика (предност слојевитих структура које стоје иза одбира теме дисертације). На крају наводи истакнуте резултате мерења магнетоелектричног ефекта код танких мултифероичних филмова, и јасно образлаже избор титанатне и феритне компоененте, као и технике добијања филмова.

*Експериментални део* садржи процес синтезе раствора/солова прекурсора и њихове реолошке карактеристике. Као битан део дисертације, процес одабира оптималне технике nanoшења филмова представљен је у овом поглављу, кроз комбиновање три технике nanoшења ("дип" процес, "спин" процес и раст из раствора) и утицај вискозитета и процеса гелирања солова при ротацији супстрата. Такође, објашњен је и значај сушења нанешених филмова на 500 °C. Наиме, nanoшењем растом феритног слоја техником раста из раствора није дало филмове задовољавајуће морфологије, "дип" техника даје филмове велике дебљине, а "спин" техника даје филмове задовољавајућих карактеристика. Други врло важан део јесте опис процеса мерења диелектричних особина, утицај типа електрода кондензатора са паралелним плочама и димензија интердигиталног кондензатора на квалитет мерења. Као резултат, одабран је систем платина/филм/злато.

У поглављу *Резултати* приложени су подаци о испитивању микроструктуре и фазног састава филмова, њихове диелектричне, фeroелектричне и магнетне особине. Резултати структурне карактеризације пре свега показује да је добијен тражени фазни састав у распону температуре синтеровања од 750 до 900 °C, јасно дефинисаних слојева и микроструктуре на наноскали, у планираним оквирима дебљине испод 1 μm. Било је потребно комбиновати две тахнике фазне карактеризације (рендгеноструктурна анализа и Раманова спектроскопија) услед комплексности карактеризације вишефазних наноструктурних система танких филмова. Испитивање чистих компонената, титаната и ферита, показао се као добар основ при карактеризацији вишеслојних система. Идентификовано је присуство псеудокубне кристалне форме титаната, мале тетрагоналности, што је касније доказано диелектричним мерењима. Диелектрична мерења указују на комплексан утицај дизајна слојевите структуре и температуре при којој су рађена испитивања (до 200 °C) на диелектричну константу, тангенс губитака и проводљивост. Као битна појава, примећена је међуслојна поларизација (узрокована Максвел- Вагнеровим ефекатом) која је активна на повишеним температурама и види се као повећање диелектричне константе са смањењем фреквенције и широким пиком код тенгенса губитака, а наликује Дебајеовој релаксацији. Фeroеле-

критична испитивања, рађена на собној температури, показују да само чисти титанатни филмови имају слабе фероелектричне особине (при чему је максимална поларизација виша код ВТЗ филмова синтерованих на 900 °С), док је код вишеслојних филмова доминантан утицај међуслојне поларизације, при 500 Hz и 1 kHz, највероватније активиран јаким примењеним електричним пољем. Резултати испитивања магнетних особина указују на пад магнетизације са смањењем дебљине феритног слоја, што може да буде последица многобројних ефеката. Такође, представљен је и утицај температуре синтеровања на магнетизацију чистих филмова никл ферита и вишеслојних филмова.

У *Дискусији*, резматране су међуслојне интеракције код вишеслојних филмова идентификоване при диелектричним, фероелектричним и магнетним мерењима. Прво је објашњено порекло и механизам међуслојне поларизације на граници две фазе (титанта/ферит и граница зрна/унутрашњост зрна), као и утицај температуре и фреквенције на овај процес. Закључено је да највероватније термички осетљив механизам провођења у феритној фази узрокује међуслојној поларизацији. Фероелектрична својства, указују на узрок међуслојне поларизације при мерењима на собној температури. На основу електричних мерења одређена је оптимална структура са потенцијално најбољом магнетоелектричном интеракцијом. Магнетна мерења таксативно објашњавају шта све може да утиче на облик магнетног хистерезиса, односно његове карактеристике, и наводе на претпоставку да напони настали услед механичке интеракције имају интензиван утицај на магнетизацију, при чему се не искључује и могуће присуство осталих ефеката. Са аспекта магнетних особина, такође је одређена геометрија слојева од које се може очекивати најбоља магнетоелектрична интеракција.

У последњем поглављу, *Закључци*, јасно су сумирани закључци реализованих истраживања, који поуздано представљају карактеристике вишеслојног система танких филмова на бази  $\text{BaTiO}_3/\text{NiFe}_2\text{O}_4$ , и испуњавају циљеве постављене у пријави дисертације.

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

Таксативно навести називе радова, где и када су објављени. Прво навести најмање један рад објављен или прихваћен за објављивање у часопису са ISI листе односно са листе министарства надлежног за науку када су у питању друштвено-хуманистичке науке или радове који могу заменити овај услов до 01. јануара 2012. године. У случају радова прихваћених за објављивање, таксативно навести називе радова, где и када ће бити објављени и приложити потврду о томе

### *Rad kategorije M21*

1. D. Tripkovic, J. Vukmirovic, B. Bajac, N. Samardzic, E. Djurdjic, G. Stojanovic, V.V. Srdic, "Inkjet patterning of in situ sol-gel derived barium titanate thin films", *Ceram. Int.*, **42** [1] (2015) 1840–1846.
2. Ž. Cvejić, E. Đurđić, G. Ivković Ivandekić, B. Bajac, P. Postolache, L. Mitoseriu, V.V. Srdić, S. Rakić, "The effect of annealing on microstructure and cation distribution of  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ ", *J. Alloys Compd.*, 649 (2015) 1231–1238.

### *Rad kategorije M22*

3. B. Bajac, J. Vukmirović, Đ. Tripković, E. Đurđić, J. Stanojević, Ž. Cvejić, B. Škorić, V.V. Srdić, "Structural characterization and dielectric properties of  $\text{BaTiO}_3$  thin films obtained by spin coating", *Process. Appl. Ceram.*, **8** [4] (2014) 219–224.
4. N. Samardzic, B. Bajac, V.V. Srdic, G.M. Stojanovic, "Conduction Mechanisms in Multiferroic Multilayer," *J. Electron. Mater.*, **46** (2017) DOI: 10.1007/s11664-017-5618-2.

### *Rad kategorije M24*

5. B. Bajac, J. Vukmirović, I. Tokić, S. Ognjanović, V.V. Srdić, "Synthesis and characterization of multilayered  $\text{BaTiO}_3/\text{NiFe}_2\text{O}_4$  thin films," *Process. Appl. Ceram.*, **7** [1] (2013) 15–20.

## VII ЗАКЉУЧЦИ ОДНОСНО РЕЗУЛТАТИ ИСТРАЖИВАЊА

У докторској дисертацији представљена је синтеза раствора/солова прекурсора баријум титаната и никл ферита, одређивање оптималне технике синтезе и процесних параметара добијања танких вишеслојних филмова на различитим супстратима. Испитивањем функционалних карактеристика вишеслојних структура филмова различитог дизајна одређене се оптималне структуре које са аспекта електричних и магнетних особина треба да имају најбољи магнетоелектрични одговор.

Добијени солови/раствори прекурсора били су стабилни у испитиваном временском периоду (седам дана). Величина честица сола/раствора титанатог и феритног имали стабилан вискозитет, 4-5 mPa·s и 3 mPa·s респективно, величине честица свега неколико нанометара. Присуство алкоксида може да утиче негативно на стабилност титанатних солова, али има врло битну улогу у току депозиције јер компензује утицај површинског напона при смањивању дебљине слоја у току ротације супстрата. Код феритних раствора, површински напон је смањен додатком сурфактанта.

Сушење/загревање сваког слоја приликом депозиције на 500 °C било је неопходно ради потпуног отпаривања заосталог растварача, а тиме и спречавања стварања макроскопских дефеката на његовој површини. Синтеровањем филмова у температурном опсегу од 750 до 900 °C на силицијумском супстрату са слојем платине добијају се филмови сачињени од перовскихитних  $\text{BaTiO}_3$  и спинелних  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  слојева без секундарних фаза, равне површине, униформне дебљине (60 nm, односно 40 nm) и без пукотина. Добијени филмови имали су величину зрна неколико десетина нанометара. Филмове карактерише  $\text{BaTiO}_3$  у псеудокубном кристалном облику за који је карактеристична мала тетрагоналност, која се мења са температуром синтеровања.

Диелектрична својства чистих  $\text{BaTiO}_3$  филмова су у сагласности са структурном карактеризацијом, и показују пораст диелектричне константе услед раста зрна, са око 200 на 285 (при синтеровању на 750 и 900 °C), релативно мале диелектричне губитке (испод 0.1) у скоро целом фреквентном опсегу, и очекивано повећање проводљивости са температуром. Код вишеслојних филмова примећена је појава међуслојне поларизације на повишеним температурама. Наиме, термички активирани носиоци наелектрисања у феритном слоју се нагомилавају на граници два слоја различите проводљивости (граница зрно/унутрашњост зрна и/или титанатни слој/феритни слој), и привидно повећавају вредност диелектричне константе. Ова појава се види и кроз диелектричне губитке као широк пик који се помера према вишим фреквенцијама са повећањем температуре. Најинтензивнији утицај међуслојне поларизације има филм са највећим удеоом феритне фазе.

Титанатни филмови су једини имали дефинисану хистерезисну петљу, непотпуне сатурације и малих вредности заостале поларизације и коерцитивног поља, на собној температури. Повећањем температуре синтеровања са 750 на 900 °C, максимална поларизације је порасла са око  $10 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  на око  $13 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ , респективно, услед раста зрна. Међуфазни екепти поларизације су примећени и код фероелектричних мерења, при чему су показали интензивније присуство са повећањем примењеног електричног поља, посебно при нижим фреквенцијама. Са аспекта диелектричних и фероелектричних мерења, као потенцијално најбољи избор дизајна слојевите структуре, био је узорак са дебљим титанатним слојевима и тањим феритним.

Магнетним мерењима су добијене хистерезисне петље код готово свих узорака. Магнетни хистерезис чистих феритних филмова био је карактеристичан за феримегнетни материјал. Сатурациона магнетизација феритних филмова је расла са  $60 \text{emu}/\text{cm}^3$  на  $80 \text{emu}/\text{cm}^3$ , синтеровањем на 750 °C и 900 °C респективно услед раста зрна. На смањење магнетизације вишеслојних филмова са повећањем броја контактних ВТ/НФ може да утиче пуно фактора, али се претпоставља се да затезање настало махеничком интеракцијом између титанатних и феритних слојева има доминантан утицаја на магнетна својства.

## VIII ОЦЕНА НАЧИНА ПРИКАЗА И ТУМАЧЕЊА РЕЗУЛТАТА ИСТРАЖИВАЊА

Експлицитно навести позитивну или негативну оцену начина приказа и тумачења резултата истраживања

Кандидат Бранимир Бајац, испунио је циљеве и задатке представљене у пријави докторске дисертације. Добијени резултати представљају систематски планирано и креативно решавање проблема добијања комплексних вишеслојних  $\text{BaTiO}_3/\text{NiFe}_2\text{O}_4$  структура на наноскали, и њихову структурну и функционалну карактеризацију. Резултати представљени кроз слике и графике јасно показују резултате мерења, и ослањају се на бројна референтна истраживања. Комисија са задовољством позитивно оцењује начин приказивања и тумачење добијених резултата.

<p><b>IX КОНАЧНА ОЦЕНА ДОКТОРСКЕ ДИСЕРТАЦИЈЕ:</b></p> <p>Експлицитно навести да ли дисертација јесте или није написана у складу са наведеним образложењем, као и да ли она садржи или не садржи све битне елементе. Дати јасне, прецизне и концизне одговоре на 3. и 4. питање:</p>
<p>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</p>
<p>2. Да ли дисертација садржи све битне елементе На основу укупне оцене дисертације, Комисија је утврдила да дисертација садржи све потребне елементе јасно представљеног научног истраживања. Садржи добар увид у актуелно стање у датој области науке кроз референце, јасан теоријски увод, детаљно представљен експериментални део, опсежну интерпретацију резултата и њихову концизну дискусију, као и јасне закључке.</p>
<p>3. По чему је дисертација оригиналан допринос науци Докторска дисертација кандидата Бајац Бранимира представља оригиналан допринос науци и развоју нанотехнологија са аспекта добијања комплексних вишеслојних танких филмова једноставном и економски оправданом техником. Потпуно оригиналан је приступ добијања наноструктурних вишеслојних <math>BaTiO_3/NiFe_2O_4</math> филмова, као и начин утврђивању везе процесних параметара синтезе, депоновања и термичког третмана са структуром добијених мултифероичних филмова. Оригиналан допринос науци огледа се и у корелацији резултата структурне и функционалне карактеризације, као и тумачењу значаја идентификованих међуслојних ефеката, (поларизације и маханичког зетезања) насталих услед интеракције између титанатних и феритних слојева. Детаљно испитани оптимални услови синтезе и процесирања вишеслојних филмова, презентовано у овом раду, имају велики практичан значај у овој још увек релативно новој области науке о материјалима.</p>
<p>4. Недостаци дисертације и њихов утицај на резултат истраживања Недостаци ове докторске дисертације нису примећени.</p>
<p><b>X ПРЕДЛОГ:</b></p> <p>На основу укупне оцене дисертације, комисија предлаже:</p>
<p>На основу позитивне оцене докторске дисертације под називом „Синтеза, микроструктура и функционална карактеризација мултифероичних <math>BaTiO_3/NiFe_2O_4</math> вишеслојних танких филмова“, дипл. инг. Бајац Бранимира, Комисија предлаже да се прихвати ИЗВЕШТАЈ О ОЦЕНИ ДОКТОРСКЕ ДИСЕРТАЦИЈЕ, а кандидату одобри одбрана дисертације.</p>

ПОТПИСИ ЧЛАНОВА КОМИСИЈЕ

\_\_\_\_\_  
**др Горан Стојановић**, редовни професор, председник  
Факултет техничких наука, Универзитет у Новом Саду

\_\_\_\_\_  
**др Владимир В. Срдих**, редовни професор, ментор  
Технолошки факултет Нови Сад, Универзитет у Новом Саду

\_\_\_\_\_  
**др Жељка Цвејић**, варедни професор, ментор  
Природно-математички факултет, Универзитет у Новом Саду

\_\_\_\_\_  
**др Марија Милановић**, доцент, члан  
Технолошки факултет Нови Сад, Универзитет у Новом Саду

\_\_\_\_\_  
**др Иван Стијеповић**, научни сарадник, члан  
Технолошки факултет Нови Сад, Универзитет у Новом Саду