Prof. nzw. dr hab. inż. Anita Olszówka-Myalska
Wydział Inżynierii Materiałowej i Metalurgii
Politechnika Śląska
Ul. Krasińskiego 8, 40-019 Katowice

Katowice 30.10.2017.

Ocena rozprawy doktorskiej mgr. inż. Jolanty LASKIEWICZ-ŁUKASIK

pt. „Spiekanie reakcyjne ceramiki TaB_2 metodą SPS oraz charakterystyka wybranych właściwości otrzymanych materiałów"

Wykonana na zlecenie Prodziekana Wydziału Inżynierii Materiałowej Politechniki Warszawskiej prof. nzw. dr. hab. inż. Jerzego R. Sobieckiego z dnia 17.10.2017 r.

1. Charakterystyka podjętej problematyki naukowo-badawczej

W swojej pracy doktorskiej p. mgr inż. Joanna Laskiewicz-Łukasik zajęła się zagadnieniem kształtowania struktury i właściwości dwuborku tantalu, materiału ceramicznego, który charakteryzuje wysoka temperatura topnienia, dobre właściwości mechaniczne i równocześnie dobra przewodność cieplna i elektryczna. Oznacza to możliwość jego aplikacji w ekstremalnych warunkach, w których metale wysokotopliwe i klasyczne materiały ceramiczne nie mogą być stosowane. Wytwarzanie wyrobów spiekanych z tego typu ceramiki nastręcza problemy, które wynikają z trudnej spiekalności dwuborku tantalu, a cena samego proszku jest wysoka.

Autorka rozprawy przyjęła inną koncepcję otrzymania elementów spiekanych z TaB_2, postanowiła syntetyzować dwuborek z czystych składników tj. metalicznego tantalu i boru w wyniku spiekania metodą reakcyjnego spiekania SPS. Jest to rozwiązanie racjonalne, gdyż proszki składowe w przypadku tego materiału są tańsze, a proces można prowadzić w niższej temperaturze w porównaniu ze spiekaniem proszku dwuborku tantalu. Osiągnięcie sukcesu wymagało klasycznego w inżynierii materiałowej postępowania, określenia zależności technologia-mikrostruktura-właściwości. Oznaczało to konieczność przeprowadzenia złożonego, wielowariantowego eksperymentu, który zakończył się sukcesem, a uzyskane

wyniki mają charakter poznawczy, jak i stanowią podstawę do dalszych prac o charakterze aplikacyjnym.

2. Ogólna ocena rozprawy doktorskiej

Przedłożona do oceny rozprawa doktorska napisana została w języku polskim, zawiera anglojęzyczne, szkoda że dość skromne objętościowo streszczenie, liczy w całości 242 strony i ma układ klasyczny. Zredagowana została bardzo starannie, zawiera 176 rysunków, 75 tabel i 170 pozycji bibliograficznych. W części literaturowej Autorka omówiła właściwości ceramiki wysokotopliwej i metody wytwarzania spieków na osnowie dwuborku tantalu, a także metody wytwarzania tantalu i boru będących komponentami w syntezie dwuborku. Dobór zagadnień w tej części pracy uważam za trafny, a na podkreślenie zasługuje bogata dla niej (130 pozycji) anglojęzyczna bibliografia. Wnikliwe studium stanu zagadnienia pozwoliło Autorce zaplanować i zrealizować eksperyment własny.

Pani Joanna Leaskiewicz-Łukasik sformułowała następnie cel i tezę pracy. W moim odczuciu formułowanie tezy w tym przypadku nie było konieczne, gdyż postawiony cel jest wystarczająco ambitny i zawiera elementy poznawcze, a teza na tym etapie badań z konieczności musi być bardzo ogólna.

Kolejny bardzo ważny rozdział 6., zatytułowany „Obliczenia termodynamiczne", który chyba mógł znaleźć się w części teoretycznej, uzasadnia pod względem fizykochemicznym podjęty eksperyment syntezy i precyzuje towarzyszące jej efekty cieplne w zależności od temperatury. Następnie omówiona została bogata w pracy metodyka badawcza, obejmująca charakterystykę komponentów proszkowych, mikrostruktury spieków oraz ich właściwości.

Do wytworzenia spieków TaB_2 zostały użyte 4 rodzaje proszków Ta i 2 rodzaje proszków B, z których w młynie planetarnym z mielnikami z SiN oraz WC-Co wytwarzano dwuskładnikowe mieszanki.

Autorka na tym etapie pracy wykazała się dużą, uzasadnioną w analizie przebiegu procesów syntezy skrupulatnością, i scharakteryzowała mikrostrukturę, skład fazowy, rozkład wielkości cząstek komponentów proszkowych, konfrontując je z danymi podawanymi przez producentów. Scharakteryzowała również mikrostrukturę wytworzonych zgodnie z autorską procedurą mieszanin proszków.

Następnie p. J. Laszkiewicz-Łukasik przeprowadziła spiekane reakcyjne metodą SPS pięciu mieszanin proszkowych Ta-B o stechiometrycznym składzie odpowiadającym TaB_2

oraz materiału referencyjnego w postaci komercyjnego proszku TaB_2. Zastosowała różne prędkości nagrzewania, temperaturę i czas spiekania, rejestrując krzywe zagęszczania. Kolejno charakteryzowała skład fazowy (XRD) spieków, mikrostrukturę (SEM, EDS), wyznaczała gęstość, moduł Younga, twardość i współczynnik K_{ICHV}, określiła właściwości tribologiczne w podwyższonej temperaturze oraz odporność temperaturową. Na zakończenie dokonała analizy porównawczej kosztów użytych materiałów wsadowych, tj. proszków Ta, B oraz TaB_2, która już na tym etapie potwierdziła słuszność zaproponowanej w rozprawie doktorskiej koncepcji materiałowo-technologicznej.

Za szczególne osiągnięcia pracy o charakterze poznawczym i aplikacyjnym uważam:

- Uzyskanie w wyniku jednoetapowego spiekania reakcyjnego metodą SPS, z mieszanin proszków Ta i B o właściwie dobranych proporcjach, wysokotemperaturowej ceramiki na osnowie fazy TaB_2.

- Ustalenie morfologii komponentów, które zapewniają najbardziej korzystny zespół właściwości.

- Określenie wpływu morfologii poszczególnych komponentów na temperaturę i przebieg syntezy nowej fazy.

- Charakterystykę efektów zagęszczania materiału podczas syntezy dwuborku w zależności od przyjętych w procesie SPS parametrów nagrzewania i wygrzewania.

- Wykazanie możliwości uzyskania spieku charakteryzującego sie dwumodalnym rozkładem wielkości ziarna.

- Wykazanie na podstawie badań tribologicznych korzystnej roli warstwy tlenkowej, o dobrej adhezji do podłoża, tworzącej się na powierzchni dwuborku w temp. powyżej 600°C, której obecność obniża współczynnik tarcia.

- Charakterystykę zachowania się wytworzonych materiałów w wysokiej temperaturze podczas tarcia oraz próby płomieniowej OAT.

- Wykazanie, że zaproponowana jednoetapowa procedura spiekania z użyciem mieszanin proszków reaktywnych Ta-B pozawala uzyskać materiały o właściwościach podobnych do materiałów wytworzonych w wyniku spiekania proszków TiB_2 oraz materiałów, w których proces SPS musi być poprzedzony syntezą SHS dwuborku.

Reasumując należy podkreślić, że zakres przeprowadzonych przez Doktorantkę prac dotyczących wytworzenia własnego materiału badawczego – spieków z zaawansowanego materiału ceramicznego jest bardzo obszerny i czasochłonny, podobnie jak obejmująca wiele metod charakterystyka ich struktury i właściwości. Zasługuje to na uznanie, gdyż osiągnięto

założony cel pracy, chociaż bogactwo uzyskanych wyników nie ułatwiło ich syntetycznej analizy w kategoriach poznawczych.

Obowiązkiem recenzenta jest również wyrażenie swoich uwag o charakterze dyskusyjnym i krytycznym. Są one następujące:

1. Niektóre zagadnienia dotyczące wykonywania poszczególnych próbek i ich charakterystyki mogły być przedstawione w sposób bardziej zwięzły, co zmniejszyłoby objętość pracy. Natomiast celowe wydawało się jednoznaczne pokazanie w postaci graficznej wpływu (tendencji zmian) poszczególnych parametrów technologicznych procesu wytwarzania (granulacja proszku, szybkość nagrzewania, temperatura spiekania, czas spiekania) na mikrostrukturę i poszczególne właściwości. Autorka opisuje to cząstkowo w tekście i próbowała to zrobić na rysunkach 174-176, ale rysunki te pozwalają głównie odnieść się do materiału referencyjnego, gdyż operowanie numerami „mieszanek" nie ułatwia analizy.
2. Autorka do analizy składu chemicznego proszków wyjściowych i ich mieszanin (obiekty 3D) oraz otrzymanych materiałów stosuje metodę mikroanalizy rentgenowskiej (EDS i WDS). Nie przedstawiła jednak szczegółów procedury pomiarowej dla poszczególnych prezentowanych wyników, zwłaszcza że dotyczą one analizy pierwiastków lekkich jak bor i tlen, której wyniki podano z dokładnością 0,1% mas. Proszę o komentarz do zastosowanej metodyki i uzyskanych wyników.
3. W pracy zamieszczono obrazy TEM proszku prekursora, a brak jest jakichkolwiek wyników badań TEM otrzymanych nowych materiałów – proszę wyjaśnić co dałaby ta metodyka i jak takie badania należałoby przeprowadzić.
4. Do charakterystyki wielkości ziaren TaB_2 na przekrojach płaskich jako parametru stereologicznego użyto średniej cięciwy, proszę określić metodykę i uzasadnić taki wybór metody analizy obrazu i parametru charakteryzującego ziarno.
5. Badania składu fazowego (str. 107) wykazały obecność węglika TaC wynikającą z zastosowania oprzyrządowania grafitowego. Czy obserwowany efekt dotyczy tylko strefy styku mieszanka proszków-grafit, jeżeli nie to proszę o szerszą interpretację?
6. Nie jest oczywiste, które spieki poddano badaniom tribologicznym i czy badania składu fazowego ich powierzchni wykazały obecność materiału przeciwpróbki.
7. Podpis pod rys. 80 oraz opis rys. 82 nie są jasne.
8. W pracy Autorka używa zwykle rzeczownika temperatura w liczbie mnogiej, językoznawcy uważają iż nie jest to poprawne (Słownik Języka Polskiego PWN).

Inne uwagi o charakterze redakcyjnym przekazałam Doktorantce bezpośrednio.

9. Proszę o wskazanie na obronie, w trakcie prezentacji, aktualnych i prognozowanych aplikacji materiałów na osnowie dwuborku tantalu.

3. Wniosek końcowy

Rozprawa doktorska mgr inż. Joanny Laszkiewicz-Łukasik zawiera wartościowe wyniki badań i wnosi znaczący wkład w poznanie procesu syntezy TaB_2 podczas spiekania SPS mieszanin proszków Ta i B. Ich uzyskanie poprzedzone zostało wnikliwymi studiami literaturowymi obejmującymi technologie wytwarzania, jak i podstawy fizykochemiczne. Doktorantka wykazała opanowanie trudnego warsztatu badawczego w zakresie projektowania procesu technologicznego z uwzględnieniem uwarunkowań materiałowych i parametrów syntezy dwuborku tytanu metodą SPS oraz umiejętność charakterystyki struktury i właściwości spieków.

Wnioskuję do Rady Wydziału Inżynierii Materiałowej Politechnik Warszawskiej o dopuszczenie mgr inż. Janny Laszkiewicz-Łukasik do publicznej obrony pracy doktorskiej.