

Рецензія

рецензента, д.т.н., ст. досл. Корогодської Алли Миколаївни
на дисертаційну роботу Лігезіна Станіслава Леонідовича
«СТІНОВІ КЕРАМІЧНІ МАТЕРІАЛИ З ВИКОРИСТАННЯМ
ВУГЛЕЦЬВМІСНОЇ СИРОВИНИ ТА ЕНЕРГОЗБЕРІГАЮЧИХ
ТЕХНОЛОГІЧНИХ ПРОЦЕСІВ»

подану на здобуття наукового ступеня доктора філософії за спеціальністю 161-Хімічні технології та інженерія

Детальний аналіз дисертаційної роботи Лігезіна Станіслава Леонідовича на тему «Стінові керамічні матеріали з використанням вуглецьвмісної сировини та енергозберігаючих технологічних процесів», що представлена для захисту на здобуття наукового ступеня доктора філософії у Національному технічному університеті «Харківський політехнічний інститут», дає змогу зробити комплексний висновок щодо її актуальності, ступеня обґрунтованості наукових положень, висновків, рекомендацій, достовірності та значущості отриманих результатів, наукової новизни, теоретичної та практичної цінності, надати загальну оцінку дисертації.

1. Актуальність теми

Накопичення запасів техногенних продуктів виробництва при зменшенні запасів якісної природної сировини робить актуальною проблему утилізації відходів, особливо в індустріальних районах. Одним із шляхів вирішення цієї проблеми є використання виробничих відходів та попутних продуктів у промисловості будівельних матеріалів. Зокрема, у виробництві виробів стінової кераміки як техногенну сировину застосовують золи ТЕС, відходи збагачення та ін.

Щорічний обсяг утворених відходів вуглезбагачення в гірничодобувній та збагачувальній промисловості обчислюється млн. т., частина з яких використовується в будівництві, а решта складається у відвали. Цілеспрямована технологічна переробка та утилізація відходів вуглезбагачення дозволить знизити дефіцит сировини та, відповідно, вартість будівельних матеріалів.

Одним із реальних та економічно вигідних напрямків використання відходів вуглезбагачення є одержання на їх основі керамічних виробів з високими експлуатаційними властивостями, що задовольняють вимоги ДСТУ на відповідні види виробів. Вирішення поставленого завдання шляхом реалізації комплексного підходу до створення енерго- та ресурсоощадної технології стінової кераміки, заснованої на використанні вуглецьвмісних відходів як енергозберігаючих добавок та енергетичної сировини є актуальним та відповідає сучасним вимогам промисловості та екологічній стратегії держави.

2. Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами

Дослідження виконані відповідно до плану науково-дослідних робіт кафедри технології кераміки, вогнетривів, скла та емалей НТУ «ХПІ» в рамках двох науково-дослідних держбюджетних тем: «Розроблення наукових основ ефективного використання енергоносіїв і техногенних ресурсів в технологіях композиційних, керамічних та скломатеріалів для сучасних технічних об'єктів» (№ ДР 0120U001009), «Розробка складів для створення високоефективних неметалічних матеріалів з використанням структурно-фазового моделювання та енергозберігаючих технологічних процесів» (№ ДР 0117U004888), в яких здобувач був виконавцем окремих етапів робіт.

3. Наукова новизна одержаних результатів

У дисертаційній роботі здобувачем теоретично обґрунтована та експериментально підтверджена можливість отримання стінової кераміки за новою ресурсо- та енергоощадною технологією, що базується на застосуванні комплексу технічних рішень, які включають використання вуглевідходів як енергозберігаючих добавок та енергетичної сировини разом з окисниками, динамічного методу формування та модернізацію процесу випалу. Наукова новизна отриманих результатів полягає у наступному:

– вперше розроблений підхід до вибору окисників або їх сумішей для інтенсифікації вигорання органічного компонента різного складу в паливовмісних керамічних масах, заснований на комплексному теоретичному аналізі фізико-хімічних процесів вигорання вуглецю і

термічної деструкції окисників, що дає змогу активізувати процес випалу мас за рахунок узгодження інтервалів окиснення вуглецю і розкладу окисників;

- вперше запропоновано використання магнітно-імпульсного пресування як нового способу консолідації в технології стінової кераміки, яке, на відміну від статичного пресування, має посилену механоактивуючу дію, що забезпечує повноту формування структури керамічних матеріалів за нижчих температур випалу і покращує їх фізико-механічні характеристики;

- дістав подальшого розвитку напрямок використання вуглецьвмісних відходів як енергетичної сировини в технології стінової кераміки; доведена принципова можливість реалізації «самовипалу» напівфабрикатів на етапі ізотермічної витримки з повною заміною технологічного палива енергетично еквівалентною кількістю вуглецьвмісної сировини;

- вперше розроблена архітектура штучної нейронної мережі, адаптована до виконання задачі достовірного прогнозування властивостей стінової кераміки, отримуваної на основі паливовмісних шихт, різних видів вуглецьвмісної сировини та речовин-окисників.

4. Практична цінність отриманих результатів та рекомендації щодо їх подальшого використання.

Практична цінність отриманих результатів для впровадження їх у будівельну галузь промисловості полягає у наступному:

- розроблена ресурсо- та енергоощадна технологія виготовлення стінових керамічних матеріалів, що базується на використанні недефіцитного суглинку, відходів вуглебагачення (15–22 мас. %), речовин-окисників і нових методів консолідації (магнітно-імпульсного пресування і «самовипалу»), яка дозволила за температури випалу 950 °С отримати умовно ефективні керамічні матеріали з марками за міцністю і морозостійкістю М75–100 і F35 (ДСТУ Б В.2.7-61: 2008);

- запропонована розрахункова методика і прикладна програма для визначення оптимальних речовин-окисників та їх сумішей для інтенсифікації вигорання вуглецю паливної добавки за заданих умов випалу виробів;

- створено спеціалізоване програмне забезпечення «CeramMath» на базі штучних нейронних мереж для прогнозування границі міцності при

стиску керамічних матеріалів з урахуванням введення до маси різних видів окисників і вуглецьвмісних паливних добавок;

– розроблені номограми для оцінки енергетичного потенціалу різних видів вуглецьвмісної сировини, які дозволяють визначити економію газу на одиницю продукції, а також різницю в економії газу на різних типах вуглецьвмісної сировини за її заданого вмісту в масі.

Результати дисертації впроваджені у навчальний процес кафедри технології кераміки, вогнетривів, скла та емалей Національного технічного університету «ХПІ» при підготовці бакалаврів і магістрів, а також використанні при виконанні держбюджетних науково-дослідних робіт кафедри.

З огляду на представлену наукову новизну і практичну цінність отриманих при виконанні досліджень результатів їх можна у подальшому рекомендувати для впровадження на підприємствах будівельної галузі, а наукові результати знайдуть використання при викладанні професійно-орієнтованих дисциплін у вищих начальних закладах, які готують спеціалістів за спеціальністю 161 «Хімічні технології та інженерія».

5. Повнота викладення матеріалів дисертації в наукових працях, які опубліковані автором.

За темою дисертаційної роботи опубліковано 18 наукових праць, з них: 6 статей – у наукових періодичних фахових виданнях України категорії «А» і «Б»; 1 розділ колективної монографії (у співавторстві), 9 матеріалів апробаційного характеру, 1 стаття і 1 патент України, які додатково відображають результати дисертації. Зазначене дозволяє стверджувати, що представлена дисертаційна робота є самостійним, завершеним науковим дослідженням.

6. Аналіз змісту дисертації. Ступінь обґрунтованості наукових положень, висновків і рекомендацій, сформульованих в дисертації.

Дисертація є довершеною науково-дослідною роботою, яка містить анотацію – українською та англійською мовами, вступ, п'ять розділів, висновки до розділів і загальні висновки, список використаних джерел та додатки.

Дисертаційна робота спрямована на розроблення нових та удосконалення існуючих технологічних процесів у виробництві стінової кераміки, розроблення науково обґрунтованих способів управління виробничими процесами, реалізацію синергетичного підходу в технології стінової кераміки.

Об'єкт дослідження – фізико-хімічні та технологічні процеси отримання стінової кераміки з використанням енергозберігаючих і паливних добавок.

Предмет дослідження – фізико-хімічні закономірності перебігу і способи прискорення реакцій вигорання вуглецю добавок, технологічні параметри виготовлення стінової кераміки при використанні різних методів консолідації.

В дисертаційній роботі вирішено важливе науково-практичне завдання, яке характеризується науковою новизною і має практичне значення, а саме – розв'язано науково-практичну задачу з розроблення нової ресурсозберігаючої та енергоощадної технології стінової кераміки на основі комплексного підходу, що включає інкорпорацію вуглевідходів і впровадження енергозберігаючих хіміко-технологічних процесів на стадіях формування і випалу.

У вступі обґрунтована актуальність теми дисертації та показаний зв'язок роботи з науковими темами та напрямками досліджень кафедри; сформульовані мета і задачі дослідження; надана характеристика методів, які використовуються для їх розв'язання; відзначається наукова новизна результатів та їх практичне значення для керамічної промисловості. Також зазначений особистий внесок здобувача у проведенні дослідження, надана інформація про апробацію наукових результатів та публікацію основних матеріалів роботи, наведені відомості про структуру та обсяг дисертації.

В першому розділі проаналізовані тенденції розвитку технологічних процесів виробництва будівельної кераміки з використанням вуглецьвмісної сировини, розглянуті фізико-хімічні основи і технологічні особливості використання вуглецьвмісних добавок при отриманні стінової кераміки. Проведений аналіз складу і технологічних характеристик вуглецьвмісної

сировини, придатної для таких виробництв, показана перспективність відходів вугільної промисловості.

Проаналізовані сучасні розробки в контексті ресурсо- та енергозбереження у виробництві стінової кераміки, розглянуті технічні рішення, орієнтовані на мінімізацію витрат мінерально-сировинних ресурсів, енергоресурсів і впровадження енергоефективних технологічних процесів. Визначені невирішені аспекти, які вимагають подальших досліджень в напрямку розробки ресурсо- та енергоощадних технологій стінової кераміки і запровадження інноваційних підходів на етапах розробки і виробництва матеріалів.

У *другому розділі* подана інформація про використані в дослідженні сировинні матеріали, а також методики виготовлення зразків для проведення лабораторних досліджень. Надана характеристика методів, методик і обладнання для реалізації експериментів.

Вивчення хімічного і мінерального складу сировини, структури і фазового складу керамічних матеріалів проведено з використанням методів хімічного аналізу, гамма-спектрометрії, рентгенофазового, рентгенофлуоресцентного і термічного аналізів, а також оптичної мікроскопії. Визначення технологічних властивостей сировини і керамічних матеріалів проводилось з використанням методик згідно з діючими в Україні нормативними документами.

У *третьому розділі* проведено теоретичне обґрунтування вибору хімічних речовин з функцією каталізаторів реакції газифікації. З використанням термодинамічного аналізу розраховані швидкості реакцій окиснення вуглецю діоксидом вуглецю та визначені термодинамічні константи рівноваги реакцій розкладу речовин-окисників, що дозволило визначити окисний потенціал різних добавок. На основі аналізу процесів вигорання вуглецю залежно від умов випалу вуглецьвмісних матеріалів розраховані рівноважні склади продуктів газифікації вуглецю, що дозволило визначити тенденції зміни складу газів, співвідношення в них CO і CO₂ всередині вуглецьвмісної керамічної системи та встановити температурну залежність розподілу O₂ між цими газами.

Запропонована оригінальна методика розрахунку констант рівноваги реакцій термічного розкладу окисників (NaNO_3 , NH_4NO_3 , KNO_3 , $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$, $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$, $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$), яка дозволила одержати дані щодо швидкості їх перетворення при термообробці в інтервалі температур 700 – 1300 К. З використанням даної методики визначені температури початку розкладу розглянутих в роботі речовин-окисників та одержані дані щодо динаміки процесу, що дало можливість науково обґрунтувати найбільш ефективні добавки для інтенсифікації вигорання вуглецю за певних умов випалу виробів.

Зроблено припущення щодо синергетичної дії комбінацій окисників, з використанням штучних нейронних мереж (ШНМ) визначені найбільш ефективні їх поєднання, для чого створене прикладне програмне забезпечення. Воно дозволяє прогнозувати склад і кількість продуктів розкладу окисників (O_2 , HNO_3 , NO_2 , N_2O , NO , H_2O , CO_2), а також динаміку їх утворення в заданому інтервалі температур. На основі аналізу подвійних комбінацій розглянутих речовин-окисників з використанням ШНМ визначені пари речовин ($\text{NH}_4\text{NO}_3 + \text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ та $\text{NH}_4\text{NO}_3 + \text{NaNO}_3$) та їх співвідношення, які забезпечують максимальне перекриття інтервалу горіння вуглецевмісної складової керамічних мас.

Четвертий розділ присвячений експериментальним дослідженням вуглевідходів як енергозберігаючих добавок та енергетичної сировини в технології стінової кераміки. Досліджені хіміко-мінеральний склад, температурні інтервали вигорання органічної складової, радіаційні і технологічні властивості вуглевідходів, визначена їх функціональна роль в керамічних масах залежно від їх енергетичного потенціалу. Експериментально визначені оптимальні кількості окисників для інтенсифікації вигорання органічного компоненту з паливної добавки, досліджений їх вплив на властивості матеріалів. Встановлено, що використання комбінацій $\text{NH}_4\text{NO}_3 + \text{NaNO}_3$ та $\text{NH}_4\text{NO}_3 + \text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ (співвідношення 4 : 1) поліпшує спікання зразків, приводить до підвищення їх механічної міцності за рахунок ширшого температурного діапазону

окислювальної дії речовин-окисників та його узгодження з інтервалом вигорання вуглецю паливної добавки.

Наведені результати з дослідження ефективності магнітно-імпульсного пресування як нового способу консолідації матеріалів в технології стінової кераміки. Встановлений позитивний вплив такого пресування на структуру і механічну міцність матеріалів та його механоактивуюча дія. Показано, що це сприяє більш активним фазовим перетворенням і спіканню керамічних матеріалів і дає змогу використовувати меншу температуру випалу для досягнення заданого рівня їх властивостей.

Проведені дослідження з використання вуглецьвмісних матеріалів як енергетичної сировини в технології стінової кераміки. Встановлена принципова можливість використання «самовипалу» напівфабрикатів на етапі їх ізотермічної витримки, що в поєднанні з комбінованими окисниками і динамічним пресуванням напівфабрикатів забезпечує отримання стінової кераміки за ресурсо- та енергоощадною технологією.

Наведений опис методики прогнозування властивостей стінових керамічних матеріалів і створеної програми «CeramMath» на базі штучних нейронних мереж.

У *п'ятому розділі* наведені рекомендації щодо практичного використання технології і здійснений її техніко-економічний аналіз. Представлена технологічна схема виробництва виготовлення стінової кераміки на основі типової глинистої сировини і відходів вуглезбагачення. Створені номограми для оцінки енергетичного потенціалу різних видів вуглецьвмісної сировини при її заміні на підприємстві, зміні вмісту в масі, зміні режиму випалу.

Висновки сформульовано чітко, вони повністю висвітлюють отримані результати та відповідають поставленим завданням дослідження. За своїм рівнем висновки повністю відповідають вимогам, які висувуються до результатів дисертації на здобуття наукового ступеня доктора філософії.

Список використаних джерел достатньо повно охоплює предметну галузь та відображає опрацювання автором значної кількості сучасних вітчизняних та закордонних джерел.

Додатки до роботи містять довідки про впровадження результатів дослідження у навчальний процес НТУ «ХП» та при виконанні держбюджетних науково-дослідних робіт, а також список праць здобувача.

7. Достовірність отриманих результатів та висновків.

Достовірність наукових положень підтверджується взаємоузгодженістю і відтворюваністю результатів, відсутністю протиріч з даними відомих наукових шкіл, вітчизняних та іноземних вчених в галузі технології тугоплавких неметалічних матеріалів.

Аргументованість і конкретність наукових положень та висновків перевірено у дослідно-експериментальних випробуваннях, значний обсяг експериментальних даних належним чином аналізується з використанням методів математичної статистики і моделювання, адекватність розрахункових залежностей ретельно перевірено, що надає виваженості та коректності висновкам і рекомендаціям, які стисло відбивають наукову новизну і практичну значущість роботи.

8. Оформлення дисертації, дотримання вимог академічної доброчесності та повнота викладення наукових положень і результатів в опублікованих працях.

Дисертаційна робота має логічну структуру. Загальні висновки повністю відповідають поставленим завданням дослідження та логічно витікають з отриманих результатів.

Порушень академічної доброчесності (академічного плагіату, самоплагіату, фабрикації, фальсифікації) в дисертації та наукових публікаціях, у яких висвітлені основні наукові результати дисертації, не виявлено, про що свідчить аналіз перевірки дисертації на плагіат (платформа [StrikePlagiarism.com](https://www.strikeplagiarism.com)). Використання результатів, отриманих іншими науковцями, супроводжується посиланнями на відповідні джерела.

Матеріали дисертації були надані для широкого ознайомлення фахівцям і спеціалістам, а її результати та основні положення повністю висвітлені у друкованих виданнях, пройшли відповідну апробацію на міжнародних науково-практичних конференціях. Наведені публікації містять результати безпосередньої роботи здобувача на окремих етапах дослідження,

повною мірою відображають основні положення та висновки роботи. Авторська участь здобувача в опублікованих наукових працях погоджена зі співавторами.

8. Недоліки та зауваження до дисертаційної роботи.

1. У роботі використані окремі відходи вуглезбагачення, зокрема з територій, якій на теперішній час, є окупованими. Однак не зроблено висновок про можливість розповсюдження отриманих результатів на інші аналогічні види відходів.

2. При порівнянні теоретичної та розрахункової поведінки обраних окиснювачів не наведено розрахунку похибки, що ускладнює інтерпретацію отриманих даних (рисунки розділу 3).

3. Для обраних добавок-окисників термічного перетворення зазнає аніонна частина сполуки, тоді як оптимальна добавка містить амонію нітрат, який зазнає перетворень як за катіонною, так і за аніонною частинами. Не пояснено, яким чином це впливає на ефективність обраної добавки та чи змінюється механізм процесу окислення вуглевідходів.

4. В роботі не наведений порівняльний аналіз розробок з існуючими аналогами, зокрема з виробами підприємства – постачальника глинистої сировини, що дозволило б здобувачеві комплексно обґрунтувати переваги отриманих ним практичних результатів.

Слід відмітити, що зазначені вище недоліки та зауваження не є суттєвими, істотно не впливають на зміст дисертаційної роботи та не знижують її наукової і практичної цінності.

9. Висновки.

Представлена дисертація є довершеною науково-дослідною роботою, яка містить нові обґрунтовані результати. У дисертації розв'язано актуальну науково-прикладну задачу, яка має важливе значення для галузі знань 16 «Хімічна та біоінженерія». Тема і зміст дисертації повною мірою відповідають спеціальності 161 «Хімічні технології та інженерія».

З огляду на актуальність теми дисертації, яка виконана на високому науковому рівні, наукову новизну та практичну цінність одержаних результатів, рівень досліджень та їх достовірність, апробацію та публікації,

відсутність порушень академічної доброчесності, вважаю, що дисертація здобувача Лігезіна Станіслава Леонідовича «Стінові керамічні матеріали з використанням вуглецьвмісної сировини та енергозберігаючих технологічних процесів» повністю відповідає вимогам пп. 6, 7, 8, 9 «Порядку присудження ступеня доктора філософії та скасування рішення разової спеціалізованої ради закладу вищої освіти, наукової установи про присудження ступеня доктора філософії» (Постанова Кабінету Міністрів України № 44 від 12.01.2022 р.) та «Вимогам до оформлення дисертацій», затвердженим наказом МОН України від 12.01.2017 р. № 40, а її автор, Лігезін Станіслав Леонідович заслуговує присудження йому наукового ступеня доктора філософії за спеціальністю 161 «Хімічні технології та інженерія».

Рецензент – доктор технічних наук,
старший дослідник, завідувач кафедри
загальної та неорганічної хімії
Національного технічного університету
«Харківський політехнічний інститут»

