

**UNIVERSIDADE FEDERAL DE CAMPINA GRANDE
CENTRO DE CIÊNCIAS E TECNOLOGIA
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIAS E
ENGENHARIA DE MATERIAIS**

Sabrina Kelly Trajano Basilio

**OBTENÇÃO DO CENTRO ABSORVEDOR $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ PARA USO NA
FREQUÊNCIA 8-12 GHZ**

Campina Grande – PB

2020

Sabrina Kelly Trajano Basilio

**OBTENÇÃO DO CENTRO ABSORVEDOR $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ PARA USO NA
FREQUÊNCIA 8-12 GHZ**

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Ciência e Engenharia de Materiais como requisito à obtenção do título de **Mestre em Ciência e Engenharia de Materiais**.

Orientador: Prof.^a Dr.^a Ana Cristina Figueiredo de Melo Costa (UAEMA/UFCG)

Agência Financiadora: CAPES/FAPESQ

Campina Grande – PB

2020

B312o Basilio, Sabrina Kelly Trajano.
Obtenção do centro absorvedor $Ni_{0,5-x}Cu_{2x}Fe_2O_4$ para uso na frequência 8-12 GHz / Sabrina Kelly Trajano Basilio. - Campina Grande, 2021.
68 f. : il. Color

Dissertação (Mestrado em Ciência e Engenharia de Materiais) - Universidade Federal de Campina Grande, Centro de Ciências e Tecnologia, 2020.
"Orientação: Profa. Dra. Ana Cristina Figueiredo de Melo Costa".
Referências.

1. Ferrita. 2. NiCuZn. 3. Absorvedor de Radiação Eletromagnética. 4. Reação de Combustão. I. Costa, Ana Cristina Figueiredo de Melo. II. Título.

CDU 549.73(043)

VITAE DO CANDIDATO

- Engenharia de Materiais pela UFCG (2016)
- Mestre em Ciências e Engenharia de Materiais pela UFCG (2020)

SABRINA KELLY TRAJANO BASÍLIO

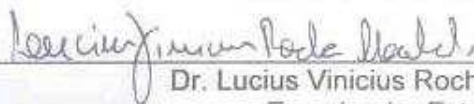
OBTENÇÃO DO CENTRO ABSORVEDOR $N_{10.5-x}Zn_{0.5-x}Cu_{2x}Fe_{20.4}$ PARA USO NA
FREQUÊNCIA 8-12GHZ

Dissertação apresentada ao Programa
de Pós-Graduação em Ciência e
Engenharia de Materiais como requisito
parcial à obtenção do título de **Mestre
em Ciência e Engenharia de
Materiais**.

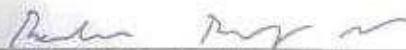
Aprovado em: 27/02/2020



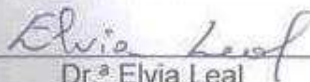
Dr.^a Ana Cristina Figueiredo de Melo Costa
Orientadora
PPG-CEMat/UAEMA/UFCG



Dr. Lucius Vinicius Rocha Machado
Examinador Externo
UAI/IFPB



Dr. Romualdo Rodrigues Menezes
Examinador Interno
PPG-CEMat/UAEMA/UFCG



Dr.^a Elvia Leal
Examinadora Externa
UAEMA/PNPD/CAPES/UFCG

AGRADECIMENTOS

A Deus, pois foi Ele que direcionou os meus passos e me deu forças para chegar até aqui. Sem Ele nada posso fazer.

À minha Família, pois sempre esteve me apoiando e incentivando a nunca desistir. Foram os braços de Deus nos momentos mais difíceis. Sem os seus cuidados não sei o como seria.

Aos meus amigos, pois se fizeram sempre presente na minha jornada acadêmica e se alegraram junto comigo nas minhas conquistas. E, se colocaram sempre em oração por mim. Os amigos é o socorro de Deus.

À minha orientadora Prof^a. Dr^a. Ana Cristina Figueiredo de Melo Costa, pela sua disponibilidade e atenção em me ajudar nessa trajetória. Seu conhecimento contribuiu imensamente para enriquecer esse trabalho.

Aos colegas do LabSMaC (Elvia, Ana Flávia, Adriano, Ana Carla, Polyana, Dayse, Gabriela e Genival), por toda atenção, contribuição e incentivo. Principalmente, a Elvia Leal que não mediu esforços para ajudar contribuindo imensamente com o seu conhecimento. Com a ajuda de todos os colegas essa jornada se tornou mais leve e simples de concluir.

À Fapesq/Capes pelo financiamento da bolsa concedida.

RESUMO

As ferritas NiCuZn são materiais que podem ser utilizados em diversas aplicações na área tecnológica. Sua aplicação como absorvedor de radiação eletromagnética vem se destacando, uma vez que este material apresenta ótimas propriedades elétricas e magnéticas. Assim, o objetivo deste trabalho é obter a ferrita $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0; 0,1; 0,15$ mol de Cu) para uso como absorvedores de radiação eletromagnética na frequência de 8 a 12 GHz. As amostras foram caracterizadas por difração de raios X (DRX), análise química por fluorescência de raios X por energia dispersiva (EDX), espectroscopia na região do infravermelho por transformada de Fourier (FTIR), distribuição granulométrica, análise textural por adsorção de nitrogênio (BET), análise termogravimétrica (TGA), densidade experimental por picnometria a gás hélio, microscopia eletrônica de varredura (MEV), medidas magnéticas e análise eletromagnética. Os resultados mostraram que as ferritas NiZn e NiZnCu monofásicas só foram obtidas após o processo de calcinação, e que sem o tratamento térmico, a hematita aparece como fase segregada. Os tamanhos de cristalito variaram de 24,9 a 88,7 nm. Após a calcinação foi observado uma morfologia mais densa das amostras. Os tamanhos de partículas variaram de aproximadamente 19 a 175 nm. Dentre as amostras não calcinadas, a adição de 0,2 mol de Cu na ferrita NiZn possibilitou um aumento na magnetização de saturação, atingindo o valor de 29,7 emu/g, enquanto que nas amostras calcinadas, a maior magnetização foi alcançada pela ferrita NiZn pura, com valor de 88,4 emu/g. As propriedades eletromagnéticas foram favorecidas tanto pela presença do cobre como pelo tratamento térmico resultando em uma absorção eletromagnética superior a 99% na frequência de 11,5 GHz para a amostra calcinada e dopada com 0,3 mol de cobre.

Palavras-chave: ferrita NiCuZn, absorvedor de radiação eletromagnética, reação de combustão.

ABSTRACT

NiCuZn ferrites are materials that can be used in various applications in the technological area. The application as an absorber of electromagnetic radiation has stood out, since this material has excellent electrical and magnetic properties. Thus, the objective of this work is to obtain the $\text{Ni}_{0.5-x}\text{Zn}_{0.5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ferrite ($x = 0; 0.1; 0.15$ mol of Cu) by combustion reaction on a pilot scale with 200g / batch, in order to present nanocharacteristics suitable for use as absorbers of electromagnetic radiation in the frequency of 8 to 12GHz. The samples were characterized by X-ray diffraction (XRD), chemical analysis by X-ray fluorescence by dispersive energy (EDX), infrared spectroscopy with Fourier transform (FTIR), particle size distribution, textural analysis by nitrogen adsorption (BET), thermogravimetric analysis (TGA), experimental density by helium gas pycnometry, scanning electron microscopy (SEM), magnetic measurements and electromagnetic analysis. The results showed that the single-phase NiZn and NiZnCu ferrites were only obtained after the calcination process, and that without heat treatment, hematite appears as a segregated phase. Crystallite sizes ranged from 24.9 to 88.7 nm. After calcination, a denser morphology of the samples was observed. Particle sizes ranged from approximately 19 to 175 nm. Among the non-sintered samples, the addition of 0.2 mol of Cu in the NiZn ferrite allowed an increase in the saturation magnetization, reaching the value of 29.7 emu/g, while in the sintered samples, the highest magnetization was achieved by the ferrite Pure NiZn, with a value of 88.4 emu / g. The electromagnetic properties were favored both by the presence of copper and by the heat treatment resulting in an electromagnetic absorption greater than 99% at the frequency of 11.5 GHz for the sample sintered and doped with 0.3 mol of copper.

Keywords: NiCuZn ferrite, electromagnetic radiation absorber, combustion reaction.

PUBLICAÇÕES

BASILIO, S. K. T.; LEAL, E.; NASCIMENTO, A. C. C.; SILVA, G. F.; COSTA, A. C. F. FILHO, M. J. G. A. P.; ARCANJO, A. P. **Estudo da síntese das ferritas de espínelio NiCuZn por reação de combustão em escala piloto.** In 63° Congresso Brasileiro de Cerâmica (63° CBC). Bonito – MS 2019.

BASILIO, S. K. T.; LEAL, E.; NASCIMENTO, A. C. C.; SILVA, M. R.; COSTA, A. C. F. M. Efeito do tratamento térmico nas propriedades estruturais, morfológicas, magnéticas e eletromagnéticas da ferrita espinélio Ni-Zn. **Revista eletrônica de materiais e processos**, v. 14, n. 3, p. 146-151, 2019.

LISTA DE TABELAS

Tabela 1 – Exemplos de aplicações de acordo com a faixa de frequência regulamentado pela Agência Nacional de Telecomunicações (ANATEL, 2005).....	20
Tabela 2 - Reagentes utilizados para a obtenção das ferritas $Ni_{0,5-x}Zn_{0,5-x}Cu_{2x}Fe_2O_4$ ($x = 0; 0,1; 0,15$ mol de Cu).....	31
Tabela 3 - Elementos e suas respectivas valências relativas (Jain <i>et al.</i> , 1981).....	32
Tabela 4 – Parâmetros medidos durante a reação de combustão.	33
Tabela 5 - Parâmetros medidos durante a reação de combustão.....	38
Tabela 6 – Tamanho de cristalito e grau de cristalinidade da ferrita Ni-Zn dopadas com cobre com as composições $Ni_{0,5-x}Zn_{0,5-x}Cu_{2x}Fe_2O_4$ ($x = 0;0,1; 0,15$ mol de Cu) como sintetizadas e calcinadas.....	39
Tabela 7 - Percentuais de óxidos teóricos e experimentais determinados por fluorescência de raios X (EDX) para as amostras das ferritas espinélio.	40
Tabela 8 - Diâmetros das partículas para $Ni_{0,5-x}Zn_{0,5-x}Cu_{2x}Fe_2O_4$ ($x = 0;0,1; 0,15$ mol de Cu)	44
Tabela 9 - Valores de área superficial específica, tamanho de partícula, volume e raio de poro para $Ni_{0,5-x}Zn_{0,5-x}Cu_{2x}Fe_2O_4$ como sintetizadas e calcinadas a $1200^{\circ}C/1h$	45
Tabela 10 - Densidade média da ferrita $Ni_{0,5-x}Zn_{0,5-x}Cu_{2x}Fe_2O_4$ como sintetizadas e calcinadas a $1200^{\circ}C/1h$	47
Tabela 11 – Parâmetros magnéticos das ferritas $Ni_{0,5-x}Zn_{0,5-x}Cu_{2x}Fe_2O_4$ ($x = 0; 0,1$ e $0,15$ mol de cobre) sintetizadas e sinterizadas a $1200^{\circ}C/1h$	50

LISTA DE FIGURAS

Figura 1 - Esquema de transformação da energia eletromagnética em calor pelo MARE (Silva <i>et al.</i> , 2009).	17
Figura 2 – Curva típica do absorvedor tipo N (Gonçalves, 2016).....	19
Figura 3 - Curva típica do absorvedor tipo W (Gonçalves, 2016).....	19
Figura 4 – Veículo no interior de uma câmara anecóica para testes de compatibilidade eletromagnética (ETS Lindgren, 2005).	21
Figura 5 – Aeronave em um campo de testes de compatibilidade eletromagnética (Nohara, 2005).	22
Figura 6 – Funcionamento do radar (Alves, 2018).	23
Figura 7 – (a) Caça norte-americano F-22 <i>Raptor</i> (Defesa, 2019) e (b) Caça multifuncional russo Su-57 (Defesa, 2019).....	24
Figura 8 – (a) Caça furtivo chinês J-20 (Defesa, 2019) e (b) B-2 <i>Spirit</i> norte-americano (Defesa, 2019).	24
Figura 9 – Embarcações marítimas (a) <i>destroyers</i> norte-americano (Ferreira, 2016) e (b) <i>Sea Shadow</i> (IX-529) norte americana (Defesa, 2018).	24
Figura 10 – Representação de óxido de Ni-Zn, com estequiometria $Ni_{0,5}Zn_{0,5}Fe_2O_4$ (Job <i>et al.</i> , 2014).....	26
Figura 11 – Energia preferencial dos cátions, para vários íons metálicos de transição nas posições A ou B (Navrotsky e Kleppa, 1968).	27
Figura 12 – Curvas da temperatura em função do tempo para as amostras de NZ, NZC2 e NZC3.....	37
Figura 13 – Difratoograma de raios X das amostras $Ni_{0,5-x}Zn_{0,5-x}Cu_{2x}Fe_2O_4$ ($x = 0; 0,1; 0,15$ mol de Cu): (a) como sintetizadas e (b) calcinadas a 1200°C/1h.....	38
Figura 14 – Espectroscopia das amostras $Ni_{0,5-x}Zn_{0,5-x}Cu_{2x}Fe_2O_4$ ($x = 0; 0,1; 0,15$ mol de Cu) (a) como sintetizadas e (b) calcinadas a 1200°C/1h.	41
Figura 15 – Distribuição granulométrica para as amostras NZ e NZ12.....	42
Figura 16 – Distribuição granulométrica para as amostras NZC2 e NZC212.....	42
Figura 17 – Distribuição granulométrica para as amostras NZC3 e NZC312.....	43
Figura 18 – Isotermas de adsorção/dessorção de N_2 para as amostras de $Ni_{0,5-x}Zn_{0,5-x}Cu_{2x}Fe_2O_4$ ($x = 0; 0,1; 0,15$ mol de Cu) (a) Como sintetizadas e (b) calcinadas a 1200°C/1h.	44

Figura 19 – Curvas de análise termogravimétrica das $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0; 0,1; 0,15$ mol de Cu) (a) Como sintetizadas e (b) calcinadas a $1200^\circ\text{C}/1\text{h}$	46
Figura 20 – Micrografias obtidas por MEV das amostras (a) NZ e (b) NZ12 com aumentos de 5000x.....	48
Figura 21 - Micrografias obtidas por MEV das amostras (a) NZC2 e (b) NZC212 com aumentos de 5000x.....	48
Figura 22 - Micrografias obtidas por MEV das amostras (a) NZC3 e (b) NZC312 com aumentos de 5000x.....	48
Figura 23 - Curvas de histerese para as ferritas $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0; 0,1$ e $0,15$ mol de cobre) (a) como sintetizadas e (b) sinterizadas a $1200^\circ\text{C}/1\text{h}$	49
Figura 24 - Curvas de refletividade versus frequência das amostras NZ e NZ12.	51
Figura 25 - Curvas de refletividade versus frequência das amostras NZC2 e NZC212	52
Figura 26 – Curvas de refletividade versus frequência das amostras NZC3 e NZC312.....	52

SUMÁRIO

1	INTRODUÇÃO.....	15
2	REVISÃO BIBLIOGRÁFICA	17
2.1	Absorvedores de radiação eletromagnética	17
2.1.1	<i>Absorvedores magnéticos</i>	17
2.1.2	<i>Absorvedores dielétricos</i>	18
2.1.3	<i>Absorvedores do tipo N</i>	19
2.1.4	<i>Absorvedores do tipo W</i>	19
2.1.5	<i>Setor civil</i>	21
2.1.6	<i>Setor militar</i>	22
2.2	Ferritas	25
2.2.1	<i>Propriedades eletromagnéticas das ferritas</i>	28
2.3	Reação de combustão	28
3	METODOLOGIA	31
3.1	Materiais.....	31
3.2	Métodos	31
3.2.1	<i>Síntese das ferritas</i>	31
3.3	Caracterizações	32
3.3.1	<i>Temperatura de reação em função do tempo</i>	32
3.3.2	<i>Difração de raios X (DRX)</i>	33
3.3.3	<i>Análise química por fluorescência de raios X por energia dispersiva (EDX)</i> 33	
3.3.4	<i>Espectroscopia na região de infravermelho por transformada de Fourier (FTIR)</i> 33	
3.3.5	<i>Distribuição granulométrica</i>	34
3.3.6	<i>Análise textural por adsorção/dessorção de N₂(BET/BJH)</i>	34
3.3.7	<i>Análise Termogravimétrica (TGA)</i>	35
3.3.8	<i>Densidade experimental por picnometria a gás hélio</i>	35
3.3.9	<i>Microscopia eletrônica de varredura (MEV)</i>	35
3.3.10	<i>Medidas magnéticas</i>	36
3.3.11	<i>Análise eletromagnética</i>	36
4	RESULTADOS E DISCUSSÃO	37
4.1	Temperatura de reação em função do tempo de reação	37
4.2	Difração de raios X (DRX).....	38

4.3	Análise química por fluorescência de raios X por energia dispersiva (EDX)....	40
4.4	Espectroscopia na região de infravermelho por transformada de Fourier (FTIR).....	41
4.5	Distribuição granulométrica.....	42
4.6	Análise textural por adsorção/dessorção de N ₂ (BET/BJH)	44
4.7	Análise termogravimétrica (TGA)	46
4.8	Densidade experimental por picnometria a gás hélio.....	47
4.9	Microscopia eletrônica de varredura (MEV)	47
4.10	Medidas magnéticas	49
4.11	Análise eletromagnética	51
5	CONCLUSÃO.....	53
	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	54
	APÊNDICE I.....	64
	APÊNDICE II.....	66

1 INTRODUÇÃO

Os absorvedores de micro-ondas podem ser usados para reduzir a interferência de energia eletromagnética de sistemas de comunicação móvel e estações de transmissão de rádio/TV em altas e baixas frequências, bem como, para reduzir a seção transversal do radar (RCS) de aeronaves, veículos marinhos e terrestres, o que é de vital importância durante ataques militares (Sözeri *et al.*, 2016).

O aumento do interesse por materiais absorvedores de micro-ondas principalmente para aplicações nas áreas militar e civil, tem impulsionado atividades de pesquisas nas últimas décadas (Chen *et al.*, 2004; Açıkalin *et al.*, 2016; Teber *et al.*, 2016). Este interesse está relacionado com o aumento das exigências das legislações governamentais no controle de níveis de radiação eletromagnética espúria emitida por equipamentos eletrônicos, das normas industriais de compatibilidade e interferência eletromagnéticas, envolvendo as indústrias de equipamentos eletroeletrônicos e de telecomunicação (O'handley, 2000).

Dentre os materiais empregados como centro absorvedor de micro-ondas, destacam-se as cerâmicas magnéticas, por serem de baixo custo, por apresentar uma excelente combinação de propriedades magnéticas e dielétricas, que podem ser ajustadas pela dopagem de íons metálicos divalentes e/ou trivalentes ou modificando seu processo de produção (Peng *et al.*, 2005; Costa e Kiminami, 2012). Estas ferritas são utilizadas em aplicações no setor da aeronáutica, exército e marinha. Na marinha, particularmente são mais utilizadas na faixa de frequência de 8 a 12 GHz (Bueno *et al.*, 2008), provavelmente, por proporcionar alta resolução de detecção, identificação e de traqueamento de alvos (Knott, Shaeffer, Tuley, 1985).

Entre as diferentes cerâmicas magnéticas, as ferritas do tipo espinélio com composição $(\text{Ni,Zn})_{1-x}\text{Me}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$, onde Me é um dopante metálico divalente se destaca como um dos materiais mais versáteis para uso no desenvolvimento de como centro de absorção de radiação eletromagnética (Ali *et al.*, 2018). Esses centros absorvedores vêm se destacando como materiais promissores devido às propriedades de alta capacidade de absorção e de resistividade, ampla faixa de absorção, baixo peso, alta estabilidade térmica e de oxidação (Praveena *et al.*, 2013; Zhang *et al.*, 2015).

Dos diversos dopantes divalentes estudados nas ferritas Ni-Zn pode-se especificar os dopantes Mn, La, Co, Ag e Cu, por exemplo. O uso do Cu nas ferritas Ni-Zn tem mostrado ser excelentes materiais para o uso como material absorvedor de radiação eletromagnética na faixa de 8 a 12 GHz por apresentar boas propriedades elétricas, magnéticas em dispositivos que atuam em altas frequências, facilidade de processamento, possivelmente devido a mudanças na estrutura, alta resistividade elétrica, excelente estabilidade química e efetiva permeabilidade em frequências intermediárias a altas (Sujatha *et al.*, 2013; Yan *et al.*, 2014; Houshiar e Jamilpanah, 2018).

Há atualmente um grande número de técnicas para a síntese de ferritas em geral, dentre elas, as mais usuais são o método de citratos precursores (Ribeiro *et al.*, 2018), sol-gel (Hashim *et al.*, 2018), coprecipitação (Liu *et al.*, 2019b), reação em estado sólido (Su *et al.*, 2019), sonoquímico (Slimani *et al.*, 2019) e a reação de combustão via fase líquida (Araújo *et al.*, 2017; Santos *et al.*, 2017; Dantas *et al.*, 2018; Leal *et al.*, 2018). Dentre todas as reações a de combustão por fase líquida vem se mostrando uma técnica atrativa, segura, rápida (questão de minutos), econômica, que usa equipamentos simples e com excelente reprodutibilidade de produção. Além do mais, tendo em vista a sua aplicação, pode-se controlar algumas condições na síntese, de forma a produzir pós monofásicos ou polifásicos, com partículas em escala nano a micrométrica (Costa e Kiminami, 2012, Dantas *et al.*, 2017; Diniz *et al.*, 2017; Dantas *et al.*, 2018).

Assim, propõe-se neste trabalho a obtenção da ferrita $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0; 0,1$ e $0,15$ mol de Cu) pelo método de reação de combustão em escala piloto para uso na frequência de 8 a 12GHz. Para esse fim, foram investigadas as características morfológicas, microestruturais, magnéticas e eletromagnéticas.

2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

2.1 Absorvedores de radiação eletromagnética

Os materiais absorvedores de radiação eletromagnética (MARE) são materiais capazes de transformar a onda eletromagnética incidente em energia térmica (calor), dissipando por meio das interações dos campos de força eletromagnética com a estrutura molecular e eletrônica do material, ou seja, por meio de moléculas polarizadas e da condutividade (Collin, 1966) (Figura 1).

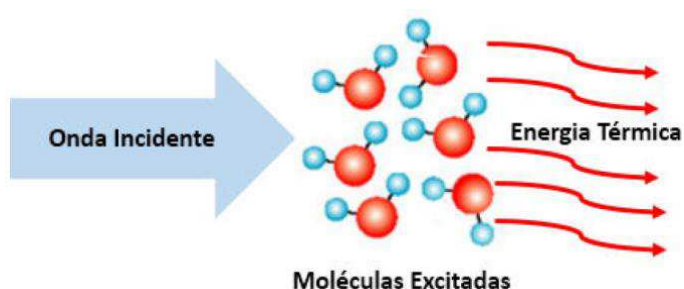


Figura 1 - Esquema de transformação da energia eletromagnética em calor pelo MARE (Silva *et al.*, 2009).

A absorção da energia eletromagnética nos MAREs magnéticos ou dielétricos, ou a combinação de ambos, está ligado ao fenômeno da ressonância, relacionado com o mecanismo da interação onda/matéria (Kazantseva *et al.*, 1997; Mikhailovsky, 1999). O termo ressonância é comumente utilizado para denominar a faixa de frequência do espectro eletromagnético que o material apresenta absorção da onda eletromagnética (Nohara *et al.*, 2007).

Os absorvedores de micro-ondas podem ser divididos em duas categorias gerais dependendo do tipo de campo que vão interagir: absorvedores magnéticos e dielétricos.

2.1.1 Absorvedores magnéticos

Os absorvedores magnéticos interagem com o campo magnético da onda e são denominados materiais com perdas magnéticas e dielétricas. Dependem do efeito da histerese magnética, que é obtido quando materiais magnéticos como ferritas, ferro carbonílico, pó de metal, α -Fe, etc., são adicionados a uma matriz. No entanto, as densidades dos materiais magnéticos, geralmente, são altas e a largura

da banda absorvente, geralmente, é estreita (Oh *et al.*, 2004; Seo e Chin, 2004; Park *et al.*, 2006).

Os mecanismos de absorção das ondas eletromagnéticas pelos absorvedores magnéticos são mais complexos em relação aos materiais dielétricos, pois os materiais magnéticos interagem com os campos magnéticos e elétricos da onda eletromagnética, resultando no fenômeno de polarização magnética (alinhamento dos dipolos magnéticos), desta forma esses materiais apresentam perdas dielétricas e magnéticas (Balanis, 1989).

2.1.2 Absorvedores dielétricos

Os absorvedores dielétricos interagem com o campo elétrico e são denominados materiais com perdas dielétricas. Possuem cargas dominantes em seus átomos e moléculas, positivas e negativas, e são mantidas em posição fixa por forças atômicas e moleculares, impedindo assim, que as cargas fiquem livres. Entretanto, quando um campo elétrico é aplicado em um dielétrico ocorre à formação de vários dipolos, que se alinham conforme a orientação do campo elétrico aplicado (Olmedo, 1977; Balanis, 1989).

Quando um material é submetido a um campo elétrico, os dipolos resultantes da polarização interagem com o campo elétrico aplicado, em materiais dielétricos esta interação faz com que ocorra um armazenamento de energia potencial elétrica, que pode ser transformada em calor pelo efeito Joule, como ocorre com o MARE (Nohara *et al.*, 2003).

Os absorventes dielétricos dependem da perda ôhmica, o que pode ser conseguido pela adição de cargas condutoras como negro de fumo, grafite ou partículas metálicas para uma matriz (Oh *et al.*, 2004; Seo e Chin, 2004; Park *et al.*, 2006).

Os absorvedores podem ser divididos de acordo com a faixa de frequência na qual absorvem em banda estreita ou ressonante, tipo N (“*Narrow*”), e banda larga, tipo W (“*Wide*”).

2.1.3 Absorvedores do tipo N

Apresentam condições de redução da reflexão para uma ou mais frequências específicas (Pessoa, 2009). Geralmente, são utilizados nos casos onde se deseja atenuar uma faixa de frequência mais estreita, como em processos de eliminação de interferências em dispositivos eletrônicos e na prevenção da reflexão de sinais de TV em parede de edifícios (Rezende *et al.*, 2000) (Figura 2).

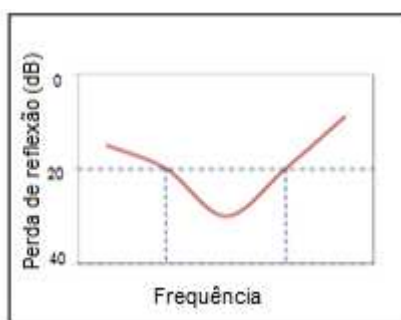


Figura 2 – Curva típica do absorvedor tipo N (Gonçalves, 2016).

2.1.4 Absorvedores do tipo W

Apresentam como característica a sua ineficiência fora da faixa de frequência, pré-estabelecidas para uso, decorrentes de alterações em suas propriedades. São utilizados quando se deseja atenuar várias frequências, este tipo de absorvedor tem como aplicação mais significativa o revestimento de câmaras anecóicas, sendo utilizados para frequências superiores a 30 MHz (Pessoa, 2009) (Figura 3).

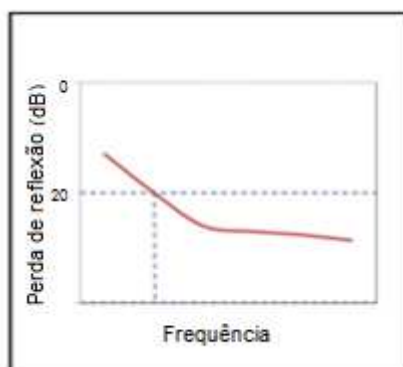


Figura 3 - Curva típica do absorvedor tipo W (Gonçalves, 2016).

Os MAREs podem ser aplicados tanto no setor civil como no militar. No setor civil, a utilização deste material envolve, principalmente, o controle de interferência e compatibilidade eletromagnética (*EMC/EMI – electromagnetic compatibility/electromagnetic interference*) e no setor militar as plataformas terrestres, aéreas e marítimas são revestidas visando a não detecção por radares inimigos (Tan, Hinberg e Wadhwani, 2006).

Para cada aplicação existe uma faixa de frequência específica, ou seja, a aplicação só tem eficiência em uma determinada faixa de frequência. Na Tabela 1 estão alguns exemplos de várias aplicações em suas respectivas faixas de frequências.

Tabela 1 – Exemplos de aplicações de acordo com a faixa de frequência regulamentado pela Agência Nacional de Telecomunicações (ANATEL, 2005).

Faixa de Frequência	Aplicação
130 – 160 KHz	Comunicação marítima
535 – 1625 KHz	Rádiodifusão
30 – 300 MHz	Televisão, Rádiodifusão
400 MHz	Telefone sem fio doméstico
824 – 895 MHz	Telefonia celular
1,2 – 1,5 GHz	Sistema de Posicionamento Global (GPS)
2,45 GHz	Forno de micro-ondas doméstico
2,7 – 2,9 GHz	Radares meteorológicos
3,0 – 3,5 GHz	Radares de aeroportos
2,5 – 5,0 GHz	Tecnologia sem fio “ <i>Bluetooth</i> ”
3,5 – 4,0 GHz	Internet por rádio
8,0 – 12 GHz	Radares militares de traqueamento aéreo
30 GHz	Radares de imageamento topográfico

2.1.5 Setor civil

No setor civil pode ser usado em sistemas de telecomunicações, processamento digital de informações, redes de distribuição de energia, telefonia celular, prevenção de “fantasmas” em aparelhos de TV, equipamentos hospitalares sistemas de comunicação por satélite, escudos protetores em satélites artificiais, redução da refletividade em superfícies refletoras como construções e pontes metálicas, redução de ruídos ou falsos sinais em sistemas de radares, na segurança de embarcações, antenas, recobrimento interno em fornos de micro-ondas para evitar fuga de radiação aumentando a segurança em usos domésticos e construção de câmaras anecóicas (Gama, Moura e Rezende, 2006).

A Figura 4 apresenta um automóvel no interior da câmara anecóica, ou seja, de um ambiente isolado do meio externo com as paredes internas revestidas com MARE (ETS Lindgreen, 2005). No interior da câmara anecóica o automóvel é ligado e espectros eletromagnéticos são emitidos em larga faixa direcionada ao veículo para verificar o seu funcionamento (ETS Lindgren, 2005). Ou seja, é verificada a compatibilidade eletromagnética dos componentes eletrônicos do automóvel em função do nível de potência e frequência da onda eletromagnética (INPE, 2005). As ondas eletromagnéticas são emitidas por meio da antena localizada na torre circular (indicada pela seta amarela). A Figura 5 apresenta uma aeronave sendo submetida ao mesmo tipo de avaliação no campo de testes com várias antenas emitindo ondas eletromagnéticas (os cabos na horizontal e diagonal formam as antenas) (Nohara, 2005).

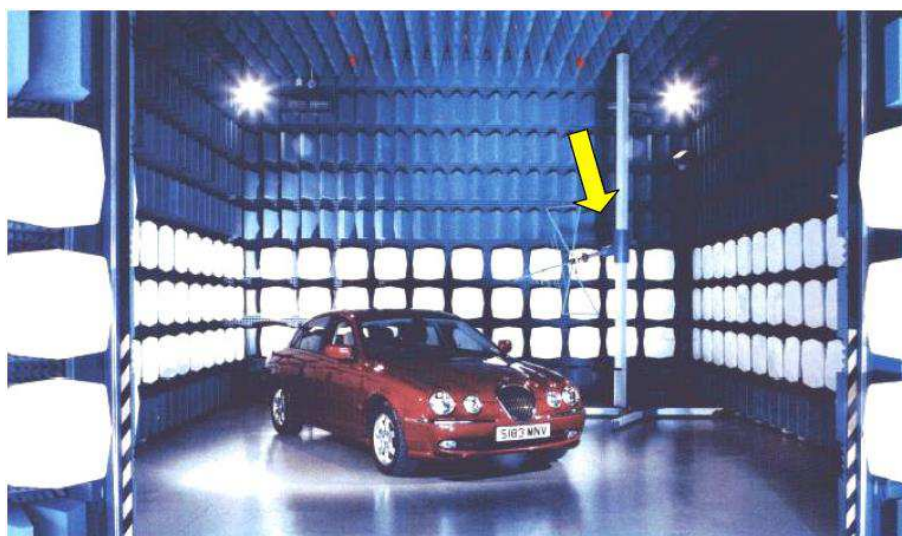


Figura 4 – Veículo no interior de uma câmara anecóica para testes de compatibilidade eletromagnética (ETS Lindgren, 2005).



Figura 5 – Aeronave em um campo de testes de compatibilidade eletromagnética (Nohara, 2005).

2.1.6 Setor militar

No setor militar, os MAREs são utilizados na cobertura de superfícies reflexivas de superfícies externas e internas de aeronaves, veículos e embarcações militares, visando a “invisibilidade” ao radar, através da redução à refletividade da energia da onda eletromagnética incidente (Skolnik, 1981; Stonier, 1991; Shin e Oh, 1993; Peng *et al.*, 2005).

Para entender o funcionamento do MARE no setor militar é necessário entender como funciona o RADAR. O RADAR (*Radiation Detection And Ranging*) é um sistema eletromagnético para detecção e localização de objetos (distância do alvo e sua elevação), que opera pela transmissão de energia na forma de ondas eletromagnéticas, varrendo um volume do espaço de cima para baixo e da esquerda para a direita detectando a natureza dos sinais de eco (Radar, 2001; Furuno FR, 2007).

O RADAR funciona como transmissor e receptor ao mesmo tempo. Para detectar a posição angular e a distância do alvo, é necessário que ocorra reflexão da onda eletromagnética e que esta retorne à antena. A onda refletida que não retornar não terá utilidade para a detecção do alvo (Paulo, 2006).

Quando a energia da onda eletromagnética emitida de um equipamento a iluminar um alvo, ela será refletida de volta para a unidade receptora (Figura 6). A onda que retorna é chamada de eco-RADAR, ou simplesmente eco, e sua energia dependerá do tamanho do alvo, de suas características observáveis e de sua

distância até a antena receptora do equipamento. Quanto menor for às características observáveis (assinaturas) do alvo, menor ele parecerá e menor será a energia da onda retornada. O eco que retorna de um alvo é quantificado pela Seção Reta RADAR (*RADAR Cross Section - RCS*). O RCS é o eco que retorna do alvo e representa um tamanho virtual como se fosse “visto” pelo radar (Radar, 2001; Furuno FR, 2007).



Figura 6 – Funcionamento do radar (Alves, 2018).

Segundo o físico alemão Heinrich Hertz, o objeto refletirá as ondas eletromagnéticas se for capaz de conduzir eletricidade. Assim, os aviões feitos de alumínio são muito mais fáceis de serem encontrados por inimigos e, no caso de aviões não militares, unidades de controle de tráfego. O que se pode fazer para operar furtivamente é voar em aviões não metálicos. Isso inclui aviões feitos de madeira, como foram feitos na década de 1930, ou fibra de carbono, como muitos são atualmente (Alves, 2018).

Porém, alguns projetistas, há algumas décadas, constroem os veículos furtivos com estrutura que visa à redução de reflexão da onda de radar incidente, notável pela inclinação das superfícies laterais para dificultar a detecção de radar (Figura 7, 8 e 9). No entanto, não é possível por meio da geometria das superfícies reduzir satisfatoriamente a RCS. Assim, é necessário utilizar o MARE (Bueno, 2003).

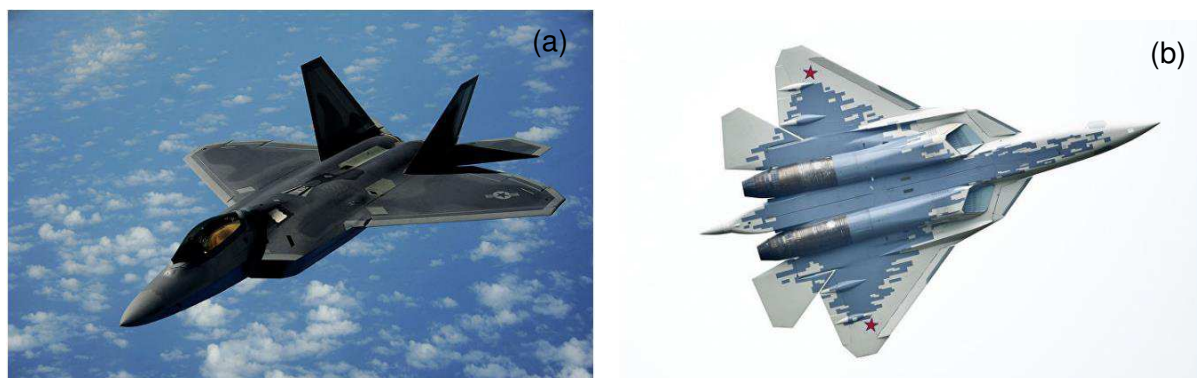


Figura 7 – (a) Caça norte-americano F-22 *Raptor* (Defesa, 2019) e (b) Caça multifuncional russo Su-57 (Defesa, 2019).

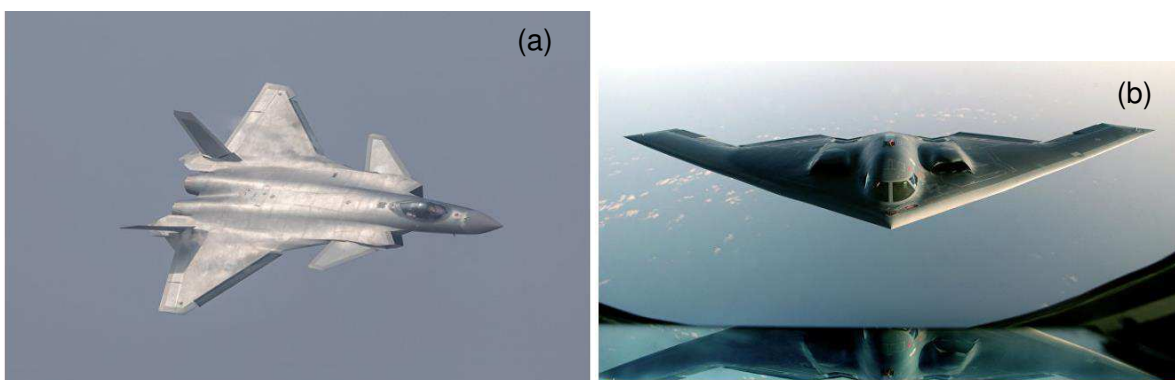


Figura 8 – (a) Caça furtivo chinês J-20 (Defesa, 2019) e (b) B-2 *Spirit* norte-americano (Defesa, 2019).

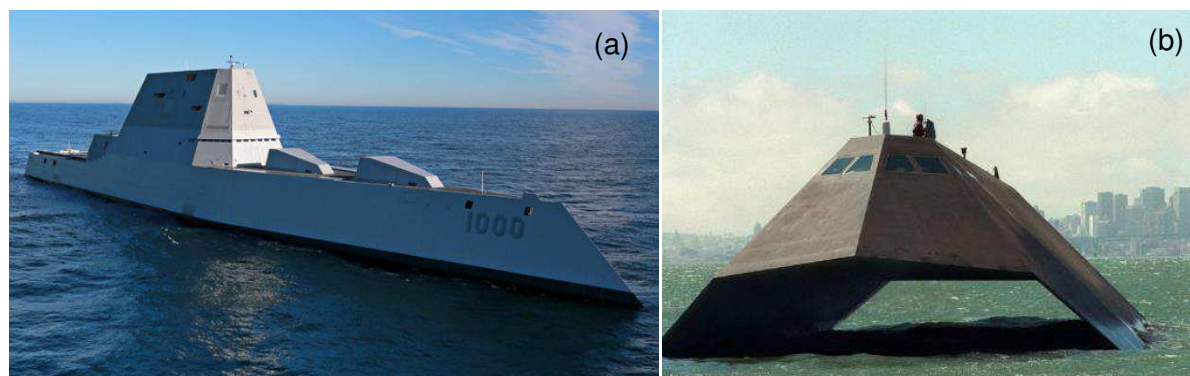


Figura 9 – Embarcações marítimas (a) *destroyers* norte-americano (Ferreira, 2016) e (b) *Sea Shadow* (IX-529) norte americana (Defesa, 2018).

Em aplicações militares, o radar é usado para vigilância, navegação, controle de armas e detecção de alvos potenciais. Os absorvedores de micro-ondas têm interesse em aplicações militares, principalmente, pela capacidade de eliminar poluição das ondas eletromagnéticas e para reduzir as assinaturas dos radares. O interesse tem aumentado, sobretudo, na faixa de frequência de 1-20 GHz, por apresentar duas formas de uso: blindagem e contramedida de interferência eletromagnética (EMI) para detecção de radar (Abbas *et al.*, 2006).

Em geral, a blindagem eletromagnética é definida como a prevenção da propagação de ondas elétricas e magnéticas de uma região para outra, usando materiais de condução ou magnético. A blindagem pode ser conseguida minimizando o sinal ao passar por um sistema de reflexão de onda ou de absorção e dissipação do poder de radiação dentro do material (Thomassin *et al.*, 2013).

Entre os materiais utilizados para estas aplicações, as ferritas exibem um comportamento interessante, absorvendo energia de ondas eletromagnéticas, apresentando a melhor relação entre o desempenho do absorvedor e a sua espessura final, baixo custo, alta estabilidade, excelente perda magnética e propriedades de perda dielétrica (Hatakeyama e Inui, 1984; Peng *et al.*, 2005; Li *et al.*, 2013; Qing *et al.*, 2014).

As ferritas exibem um comportamento interessante na faixa de radio frequência (RF) e na de micro-ondas (MW), pois absorvem energia de ondas eletromagnéticas nessas faixas de frequência. Por essa razão, esses materiais são usados como absorvedores de diversas formas e aplicações, por exemplo, folhas, tintas, filmes, cerâmica, pós, cargas em compósitos de matriz polimérica e em embarcações áreas, marinhas e terrestres (Kim *et al.*, 1994).

2.2 Ferritas

As ferritas são materiais cerâmicos não-condutores, que exibem comportamento magnético e que contêm em torno de 70% de ferro em sua composição total (Gomide, 2013). Nas ferritas com estrutura do mineral espinélio ($MgAl_2O_4$), cuja a fórmula geral é MFe_2O_4 , onde M pode ser um íon ou combinações de íons divalentes, tais como: zinco, níquel, cobre, manganês, etc. As ferritas que foram obtidas a partir da combinação de cátions divalentes são classificadas como ferritas mistas, por exemplo, $(Ni^{+2}, Zn^{+2})Fe_2O_4$ (Ferreira *et al.*, 2016).

A estrutura cristalina das ferritas Ni-Zn é semelhante a do mineral espinélio do tipo inverso, ou seja, cátions 2^+ ocupam sítios octaédricos e cátions 3^+ ocupam os sítios tetraédricos (Choi *et al.*, 2006). Essa estrutura é constituída de um empacotamento cúbico compacto de 32 átomos de oxigênio, formando 64 sítios de simetria tetraédrica (sítios A) e 32 sítios de simetria octaédrica (sítios B). Esses sítios são parcialmente ocupados: 1/8 dos sítios tetraédricos e 1/2 dos sítios octaédricos

são preenchidos pelos cátions metálicos divalentes M^{+2} (Ni^{+2} , Zn^{+2}) e pelos cátions Fe^{+3} (Gomide, 2013).

A fórmula química, no entanto, não traz informação sobre a posição dos cátions na estrutura, de modo que é mais informativo utilizar a fórmula cristalográfica, que estabelece a composição e a distribuição entre os sítios A e B: $[M^{+2}_{(1-y)}Fe^{+3}_y]_A[Fe^{+3}_{(2-y)}M^{+2}_y]_BO_2^{-4}$, onde y é o parâmetro de ocupação dos íons metálicos (Igarashi e Okazaki, 1997; El-Sayed, 2002; Gomide, 2013; Ferreira *et al.*, 2016) (Figura 10).

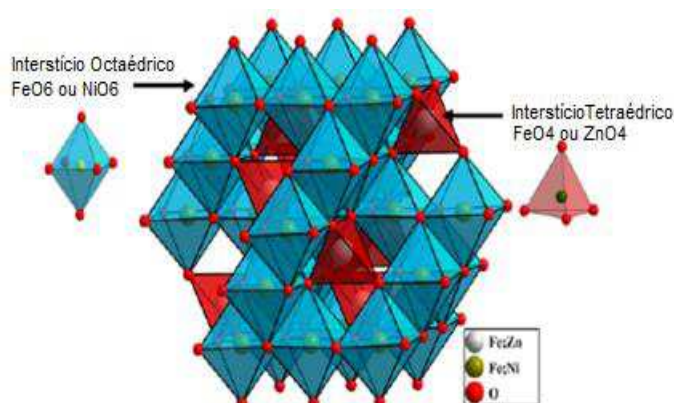


Figura 10 – Representação de óxido de Ni-Zn, com estequiometria $Ni_{0,5}Zn_{0,5}Fe_2O_4$ (Job *et al.*, 2014).

As ferritas Ni-Zn são materiais cerâmicos que exibem uma magnetização permanente, denominada ferrimagnético. Os materiais ferrimagnéticos apresentam características que se assemelham a dos ferromagnéticos, sendo que a magnetização espontânea resultante da diferença dos momentos magnéticos entre os interstícios tetraédricos e os octaédricos (Bueno *et al.*, 2008).

As propriedades magnéticas e elétricas da ferrita Ni-Zn dependem da estequiometria, incluindo a relação Ni/Zn (Lebourgeois *et al.*, 1996; Jiang *et al.*, 1999; Kondo *et al.*, 2003). As condições e temperatura de sinterização também desempenham um papel importante no controle das propriedades eletromagnéticas do material (Guo *et al.*, 2016).

As ferritas Ni-Zn são amplamente utilizadas na tecnologia da informação, por exemplo, telecomunicações, dispositivos de micro-ondas, em materiais absorvedores de micro-ondas, dentre outras (Jiang *et al.*, 2016). Mas nas últimas décadas tem aumentado o interesse de pesquisadores em estudar a influência do cobre em ferritas Ni-Zn, com o intuito de melhorar as propriedades elétricas e magnéticas para serem usadas na tecnologia da informação.

O Cu^{2+} quando adicionado a rede da ferrita Ni-Zn substitui posições octaédricas e os cátions Ni^{2+} tendem a ocupar os interstícios octaédricos e os cátions Zn^{2+} preferem preencher os interstícios tetraédricos. As posições preferenciais nos sítios tetraédricos e octaédricos dos íons dentro da rede espinélio são determinadas de acordo com o tamanho do cátion, valência e o campo cristalino (Robert, 1942).

A Figura 11 apresenta as posições preferenciais de vários cátions na estrutura espinélio de acordo com a sua energia. Esta sequência de cátions na abscissa (eixo x) é simplesmente escolhida em termos da posição preferencial do sítio octaédrico observado ou calculado.

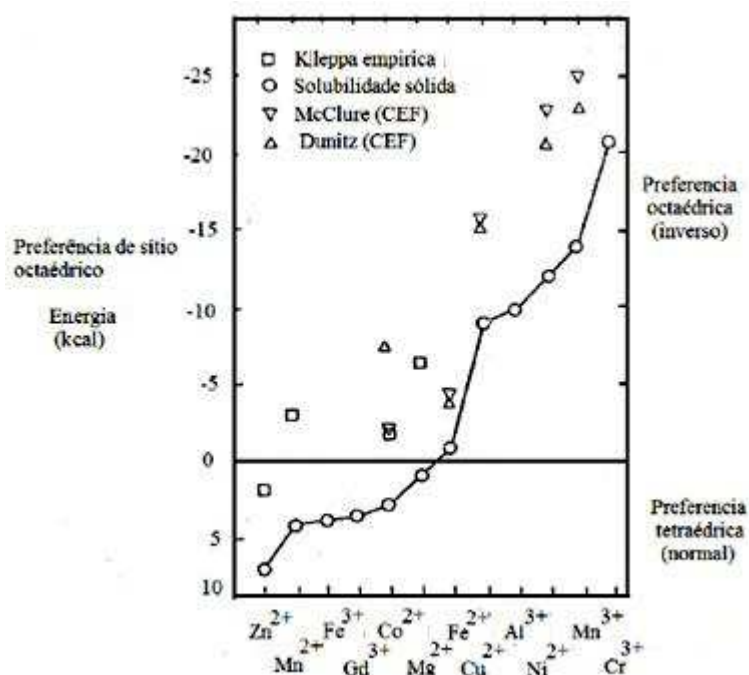


Figura 11 – Energia preferencial dos cátions, para vários íons metálicos de transição nas posições A ou B (Navrotsky e Kleppa, 1968).

O Cu^{2+} apresenta raio iônico próximo aos do Ni^{2+} e Zn^{2+} . Este íon tem preferência pelos sítios octaédricos, o que deve provocar transferência do ferro do interstício octaédrico para o tetraédrico, aumentando o momento magnético neste interstício e reduzindo a magnetização (Bueno, 2003). Segundo Kim *et al.* (1992), essa substituição mostrou ser efetiva no aumento das perdas pelo mecanismo de condução. É possível que as substituições com Cu^{2+} possam aumentar as perdas por relaxação magnética (Van Groenou *et al.*, 1969). As propriedades elétrica, estrutural, dielétrica, termoelétrica e magnética são fortemente dependentes da

distribuição de íons sobre os sítios tetraédricos e octaédricos (Rahman e Ahmed, 2005).

2.2.1 Propriedades eletromagnéticas das ferritas

As propriedades de absorção de micro-ondas são determinadas pela permissividade dielétrica complexa e a permeabilidade magnética complexa do material e precisa ser adaptada para máxima eficiência de blindagem/absorção (White, 1981). A capacidade de absorção de micro-ondas é determinada principalmente pela permissividade relativa ($\epsilon_r = \epsilon' - i\epsilon''$), permeabilidade relativa ($\mu_r = \mu' - i\mu''$), impedância eletromagnética e pela microestrutura do absorvedor (Liu *et al.*, 2008).

Nas ferritas de micro-ondas (material ferrimagnético), o mecanismo de absorção das ondas eletromagnéticas é mais complexo em relação aos materiais dielétricos. As ferritas apresentam perdas magnéticas e dielétricas, ou seja, valores de permeabilidade e permissividade (Mikhailovsky, 1999). As perdas magnéticas estão relacionadas como alinhamento e a rotação do spin de magnetização dentro dos domínios das ferritas (Lax, Button, 1962; Mikhailovsky, 1999).

Por definição (Cheparin *et al.*, 1992), os valores reais de permissividade relativa (ϵ'_r) e permeabilidade relativa (μ'_r) sempre são maiores que 1. Um material que possui zero de perda dielétrica apresenta valores dos parâmetros complexos de permissividade $\epsilon'_r = 1$ e $\epsilon''_r = 0$, ou seja, não armazena energia ($\epsilon'_r = 1$) e, conseqüentemente, não apresenta perdas ($\epsilon''_r = 0$). O mesmo é válido para a permeabilidade, um material com zero de perdas magnéticas: $\mu'_r = 1$ e $\mu''_r = 0$.

As ferritas são um material versátil quando se refere a sua obtenção, pois existem diversas técnicas capazes de oferecer características desejáveis para serem utilizadas em várias aplicações, como pós nano ou micrométrico, rapidez e baixo custo. As técnicas mais usadas são sol-ge, pechini, método convencional e reação por combustão.

2.3 Reação de combustão

De acordo com Jain *et al.* (1981), o método de combustão tem como base a técnica que deriva dos conceitos termodinâmicos usados na química dos

propelentes e explosivos, envolvendo a reação de uma mistura redox, contendo os íons metálicos de interesse como reagentes oxidantes, e um combustível, como agente redutor.

A reação de combustão consiste no aquecimento e na evaporação da solução de nitratos metálicos, fonte de cátions para a formação do óxido metálico, que reagem com o combustível redutor (composto orgânico), resultando em uma auto-ignição que gera calor por reação exotérmica. Este calor liberado é usado na formação dos óxidos cerâmicos (Jain *et al.*, 1981). O sucesso do método de reação de combustão é devido a uma mistura íntima entre os constituintes junto à utilização de um combustível adequado ou agente de complexação em um meio aquoso e uma reação exotérmica entre o combustível e o oxidante (Wu *et al.*, 2006).

Para esse método é possível usar uma variedade de combustíveis como ureia (Simões *et al.*, 2009), glicina (Leal *et al.*, 2011), α -alanina (Da Silva *et al.*, 2012) ou carboidrazida (De Freitas *et al.*, 2010), entre outros, que diferem no poder redutor e na quantidade de gases que geram. Portanto, a escolha do combustível determina a exotermicidade e duração da reação de redução-oxidação e esse fator está relacionado à valência do combustível (Jain *et al.*, 1981; Fumo *et al.*, 1996; Sathiskumar *et al.*, 2012).

Entre os combustíveis utilizados, a ureia tem a mais baixa capacidade redutora (valência total +6) e produz um pequeno volume de gases (4 mol/mol de ureia). As vantagens de usar a ureia são: disponibilidade comercial, baixo custo e por gerar altas temperaturas, as quais são necessárias para a formação das fases desejadas no produto (Segadaes *et al.*, 1998).

Considerado simples e relativamente rápido em comparação com outras técnicas de síntese, o método de combustão não envolve muitas etapas, produzindo pós com elevado grau de pureza, com alta homogeneidade química, com partículas quase sempre em escala nanométrica e elevada área superficial. O método de combustão é auto-sustentável após o início da reação e atingem altas temperaturas, que garantem a cristalização e formação de pós em curto período de tempo, com liberação de grande quantidade de gases, o que tende a minimizar o estado de aglomeração das partículas que se formam (Hetting, 1956; Mimani, 2001; Costa *et al.*, 2002).

O método de combustão é bem consolidado na literatura para obtenção de diversas ferritas para serem utilizadas nas mais variadas aplicações (Costa *et al.*,

2010; Leal *et al.*, 2011; Costa e Kiminami, 2012; Dantas *et al.*, 2016). No entanto, não foi reportado à obtenção da ferrita Ni-Zn dopada com cobre pelo método de combustão em escala piloto para ser usada como absorvedores de radiação eletromagnética.

3 METODOLOGIA

3.1 Materiais

Para a síntese das ferritas nas composições NZ ($\text{Ni}_{0,5}\text{Zn}_{0,5}\text{Fe}_2\text{O}_4$), NZ12 ($\text{Ni}_{0,5}\text{Zn}_{0,5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ calcinado a 1200 °C), NZC2 ($\text{Ni}_{0,4}\text{Zn}_{0,4}\text{Cu}_{0,2}\text{Fe}_2\text{O}_4$), NZC212 ($\text{Ni}_{0,4}\text{Zn}_{0,4}\text{Cu}_{0,2}\text{Fe}_2\text{O}_4$ calcinado a 1200 °C), NZC3 ($\text{Ni}_{0,35}\text{Zn}_{0,35}\text{Cu}_{0,3}\text{Fe}_2\text{O}_4$) e NZC312 ($\text{Ni}_{0,35}\text{Zn}_{0,35}\text{Cu}_{0,3}\text{Fe}_2\text{O}_4$ calcinado a 1200 °C) foram utilizados os reagentes descritos na Tabela 2.

Tabela 2 - Reagentes utilizados para a obtenção das ferritas $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0; 0,1; 0,15$ mol de Cu).

Reagentes	Fórmula Molecular	Massa Molecular (g/mol)	Fabricante	Pureza (%)
Nitrato de níquel hexahidratado	$\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	290,81	Vetec	99
Nitrato de zinco hexahidratado	$\text{Zn}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	297,47	Dinâmica	98
Nitrato de ferro nanohidratado	$\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$	404,00	Dinâmica	99
Nitrato de cobre II trihidratado	$\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$	241,60	Vetec	98
Ureia	$\text{CO}(\text{NH})_2$	60,06	Neon	99

3.2 Métodos

3.2.1 Síntese das ferritas

Para obtenção das composições NZ ($\text{Ni}_{0,5}\text{Zn}_{0,5}\text{Fe}_2\text{O}_4$), NZC2 ($\text{Ni}_{0,4}\text{Zn}_{0,4}\text{Cu}_{0,2}\text{Fe}_2\text{O}_4$) e NZC3 ($\text{Ni}_{0,35}\text{Zn}_{0,35}\text{Cu}_{0,3}\text{Fe}_2\text{O}_4$) pelo método de reação de combustão foi utilizado a mistura de íons metálicos dos nitratos de ferro, níquel, zinco e cobre, como reagentes oxidantes, e a ureia como agente redutor.

Para a realização da reação de combustão, a proporção da mistura inicial de cada reagente foi calculada de acordo com as valências dos elementos reativos estabelecidos pela estequiometria da reação de acordo com os conceitos da química dos propelentes e explosivos (Jain *et al.*, 1981). A mistura redox de nitratos

metálicos e do combustível foi submetida ao aquecimento direto, aproximadamente 100 °C, em um reator cônico de aço inox com capacidade de 200 g/batelada, projetado para síntese de combustão em escala piloto (Costa e Kiminami, 2012).

Para determinar a quantidade em moles da ureia em cada composição, foram consideradas as valências descritas na Tabela 3.

Tabela 3 - Elementos e suas respectivas valências relativas (Jain *et al.*, 1981).

Elementos	Valências
Carbono (C)	+ 4
Hidrogênio (H)	+ 1
Níquel (Ni)	+ 2
Zinco (Zn)	+ 2
Oxigênio (O)	- 2
Ferro (Fe)	+ 3
Nitrogênio (N)	-

Os produtos das reações obtidos na forma de flocos friáveis e porosos foram desaglomerados em malha ABNT 200 mesh (74 µm) e submetidas ao processo de calcinação a 1200°C/1h. As amostras como sintetizadas e calcinadas foram encaminhadas para as caracterizações.

3.3 Caracterizações

3.3.1 Temperatura de reação em função do tempo

Durante a síntese de reação de combustão, a temperatura de reação foi aferida em intervalos de tempo de 5 segundos, de forma *online*, utilizando um pirômetro infravermelho de marca Raytek, modelo RAYR3I ± 2°C. Mediante o gráfico de tempo x temperatura reacional foi determinada os parâmetros da combustão que estão descritos na Tabela 4.

Tabela 4 – Parâmetros medidos durante a reação de combustão.

Parâmetros	Descrição
Temperatura ignição (Ti)	Temperatura inicial que pega fogo.
Temperatura máxima (Tmáx)	Temperatura medida no pico máximo no gráfico
Tempo de ignição (ti)	Tempo medido no momento que a reação pega fogo
Tempo medido (t)	Tempo de chama medido no cronômetro pelo operador
Tempo reacional (tr)	Tempo total em que ocorre a reação

3.3.2 Difração de raios X (DRX)

A formação das fases foi identificada pelo uso de difratometria de raios X utilizando um difratômetro de raios X BRUKER modelo D2 Phaser, (radiação CuK) e voltagem de 40 kV e 30 mA de corrente. O tamanho de cristalito foi calculado a partir do software DIFFRAC.EVA com base na linha de alargamento de raios X (d311) mediante a deconvolução da linha de difração secundária do cério policristalino (utilizado como padrão) que foi utilizado a equação de Scherrer (Klug e Alexander, 1954). A cristalinidade foi calculada via software Eva e foi levada em consideração toda a área da curva, ou seja, de todos os picos, seja a amostra monofásica ou não. Essa análise foi realizada no Laboratório de Síntese e Materiais Cerâmicos (LabSMaC) – UFCG.

3.3.3 Análise química por fluorescência de raios X por energia dispersiva (EDX)

A análise semi-quantitativa dos óxidos e elementos presentes nas amostras, foram determinados por espectroscopia de fluorescência de raios X por energia dispersiva, modelo EDX-720, da marca SHIMADZU. Esta caracterização foi realizada no Laboratório de Caracterização de Materiais (LCM) - UFCG.

3.3.4 Espectroscopia na região de infravermelho por transformada de Fourier (FTIR)

Espectroscopia na região de transformada de Fourier foi obtido usando um espectrômetro Shimadzu Spectrum BX, Perkin Elmer, com leitura na faixa de 4000 a

200 cm⁻¹, resolução de 4 cm⁻¹ e 20 varreduras. Essa análise foi realizada no Laboratório de Síntese e Materiais Cerâmicos (LabSMaC) – UFCG.

3.3.5 Distribuição granulométrica

As análises granulométricas foram realizadas na faixa de 0,3 nm a 8 µm em um analisador de nanopartículas HORIBA Scientific, modelo SZ100 series, operando na faixa de 10 a 10.000 nm. O SZ-100 utiliza a técnica de dispersão dinâmica da luz para determinar o tamanho das partículas. Espalhamento de luz dinâmica é a medição de flutuações na intensidade de luz dispersa com o tempo. A leitura ocorre através do movimento Browniano das partículas em um dispersante adequado. Para realização da análise utilizou-se 0,10 g das amostras diluídas, com 50% de sílica em solução como defloculante. O ensaio foi realizado no Laboratório de Síntese de Materiais Cerâmicos (LabSMaC) - UFCG.

3.3.6 Análise textural por adsorção/dessorção de N₂(BET/BJH)

A determinação da área superficial dos pós foi realizada pelo método de adsorção de nitrogênio desenvolvido por Brunauer, Emmett e Teller (BET) visando determinar a área superficial específica dos pós obtidos da reação de combustão. A partir de isotermas de adsorção de gases sobre os pós foi possível obter as características de suas texturas. Foi utilizado um equipamento modelo NOVA 3200. Esta técnica também foi usada para determinar o tamanho médio de partículas (diâmetro esférico equivalente) por meio da Equação 1 (Reed, 1996):

$$D_{BET} = \frac{6}{S_{BET}\rho} \quad (1)$$

onde, D_{BET} é diâmetro médio equivalente de partícula (nm), S_{BET} é área superficial determinada pelo método BET (m²/g), ρ é densidade teórica ou experimental (g/cm³) e 6 é um fator calculado experimentalmente e adotado para partículas de formato consideradas esféricas e sem rugosidade. Essa análise foi realizada no Laboratório de Síntese e Materiais Cerâmicos (LabSMaC) - UFCG.

3.3.7 *Análise Termogravimétrica (TGA)*

As análises termogravimétricas (TG/DTA) dos nanocatalisadores foram realizadas em um equipamento da marca Shimadzu, modelo DTG 60H. A análise foi realizada utilizando $5 \pm 0,5$ mg das amostras, sendo acondicionadas em um suporte de alumina com razão de aquecimento de $12,5 \text{ }^\circ\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$, numa faixa de temperatura variando da ambiente a $900 \text{ }^\circ\text{C}$, sob uma atmosfera dinâmica de nitrogênio, com vazão de $50 \text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$, buscando identificar a temperatura de eliminação da parte orgânica das amostras, dos formadores de poros e as possíveis transformações de fase a elevadas temperaturas. O ensaio foi realizado na Universidade Federal de Pernambuco – UFPE.

3.3.8 *Densidade experimental por picnometria a gás hélio*

As análises das densidades foram realizadas em um equipamento Upyc 1200e v5.04 Pycnometer, da marca Quantachrome Corporation, operando com gás hélio (He). O preparo para as análises consistiu em pesagem das amostras em quantidade aproximadamente de 2,0 g e em seguida foi colocadas em estufa numa temperatura de $100 \text{ }^\circ\text{C}$ por 24 horas, com a finalidade de se retirar a umidade das amostras. Posteriormente a secagem, as amostras foram pesadas novamente e colocadas numa célula metálica (porta amostra) e finalmente analisadas.

Durante a análise, o picnômetro realizou 10 corridas ou varreduras, de forma que se tenha a média da leitura das densidades próximas entre as 10 corridas; isto resulta numa ficha com o valor da densidade (*average density*) que servirá de estudo como valor experimental. O ensaio foi realizado no Laboratório de Síntese e Materiais Cerâmicos (LabSMaC) - UFCG.

3.3.9 *Microscopia eletrônica de varredura (MEV)*

Os aspectos morfológicos dos pós dos diferentes sistemas de ferritas produzidos foram analisados por meio de microscopia eletrônica de varredura (MEV). Foi utilizado um microscópio eletrônico de varredura (MEV), marca Philips, modelo XL30 FEG. O ensaio foi realizado no Laboratório de Caracterização Estrutural (LCE) – UFSCar.

3.3.10 Medidas magnéticas

A caracterização magnética foi feita utilizando um magnetômetro de amostra vibrante (VSM), modelo 7404 da Lake Shore, com campo magnético máximo aplicado de 13700 G à temperatura ambiente. As características magnéticas tais como: magnetização de saturação (M_s), magnetização remanente (M_r) e campo coercitivo (H_c) foram obtidos a partir do gráfico das histereses, que foi observado o comportamento das curvas nas proximidades da origem do plano cartesiano. Essa análise foi realizada na Universidade Federal de Itajubá - UNIFEI.

3.3.11 Análise eletromagnética

A investigação da absorção eletromagnética de micro-ondas foi realizada usando corpos de prova com concentração 80:20 em peso de ferrita: parafina. As medidas foram realizadas por guia de ondas, a partir de dados de espalhamento obtidos no analisador de redes de micro-ondas PNA-L da Keysight. Essa análise foi realizada no Instituto de Pesquisa da Marinha – IPqM.

4 RESULTADOS E DISCUSSÃO

4.1 Temperatura de reação em função do tempo de reação

A Figura 12 ilustra graficamente a variação da temperatura em função do tempo reacional da síntese das amostras NZ, NZC2 e NZC3.

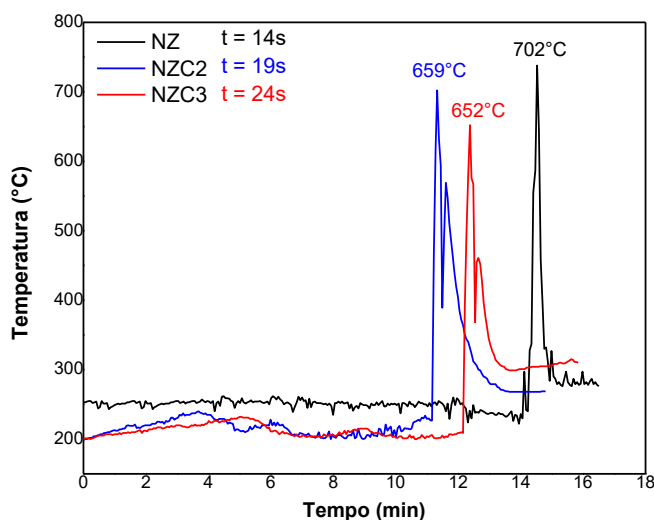


Figura 12 – Curvas da temperatura em função do tempo para as amostras de NZ, NZC2 e NZC3.

Nas curvas (Figura 12) de temperatura em função do tempo observa-se inicialmente pequenas oscilações na temperatura até atingir a temperatura de ignição. Essas oscilações se devem provavelmente ao volume de gases gerado durante a reação. Após a ignição, observa-se um aumento brusco de temperatura atingindo a temperatura máxima da reação e em seguida uma queda brusca da temperatura. Observou-se que as amostras NZ, NZC2 e NZC3 alcançaram uma temperatura máxima de 702 °C, 659 °C e 652 °C, respectivamente. Com presença de chamas incandescentes com duração de tempo de apenas 14s, 19s e 24s, respectivamente, e tempo total das reações não ultrapassando 17 minutos.

Na Tabela 5 estão algumas temperaturas e tempos retirados do gráfico temperatura versus tempo. Nota-se que a temperatura máxima diminuiu e o tempo de chama aumentou de acordo com o aumento do teor de cobre na estrutura. O tempo de ignição, reacional e a temperatura de ignição apresentaram uma pequena variação dos valores com o aumento do teor de cobre.

Tabela 5 - Parâmetros medidos durante a reação de combustão.

Parâmetros	Amostras		
	NZ	NZC2	NZC3
Temperatura ignição (Ti)	228,11 °C	234,38 °C	207,68 °C
Temperatura máxima (Tmáx)	702 °C	659 °C	652 °C
Tempo de ignição (ti)	13,9 min	11,15 min	12,79 min
Tempo de chama (t)	14 s	19 s	24 s
Tempo reacional (tr)	15,34 min	13,64 min	15,20 min

4.2 Difração de raios X (DRX)

A Figura 13 apresenta os difratogramas de raios X das amostras como sintetizadas e calcinadas a 1200°C/1h referentes aos sistemas NZ, NZC2 e NZC3.

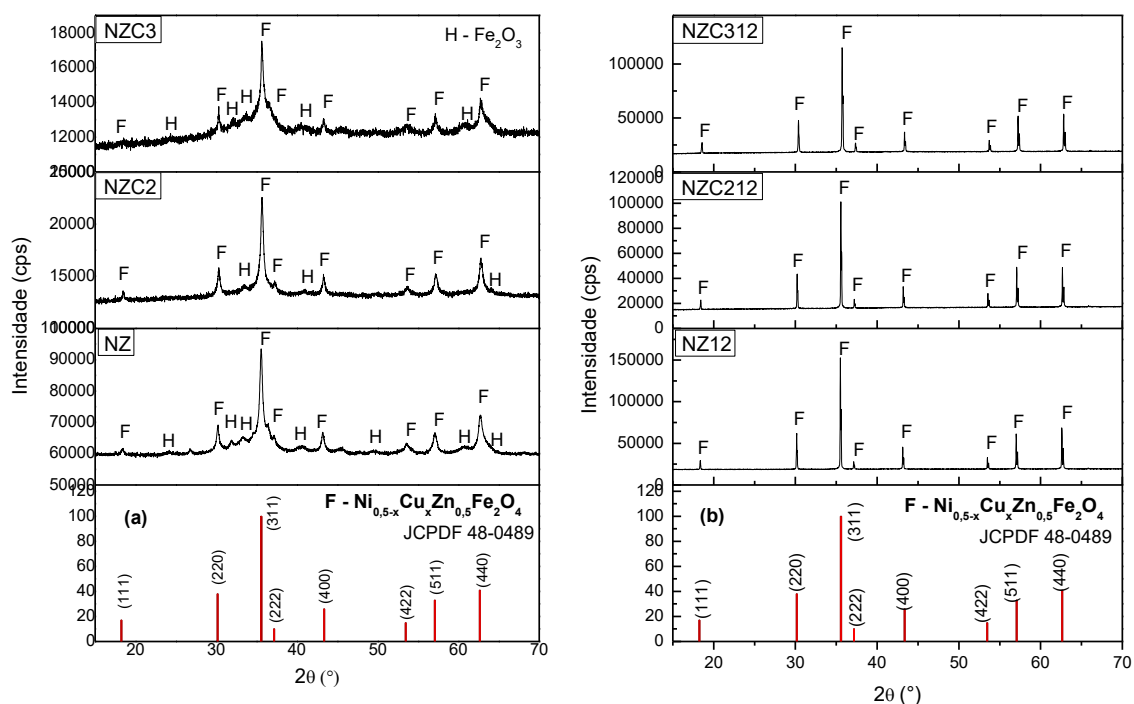


Figura 13 – Difratogramas de raios X das amostras $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0; 0,1; 0,15$ mol de Cu): (a) como sintetizadas e (b) calcinadas a 1200°C/1h.

Nos difratogramas das amostras como sintetizadas (Figura 13a), seja da amostra de NZ pura ou das dopadas com cobre, observa-se que houve a formação majoritária da estrutura espinélio NiZn e NiZnCu, com grupo espacial Fd3m, de

acordo com a ficha cristalográfica padrão JCPDS 48-0489, seguida da fase segregada de Fe_2O_3 , hematita (ficha JCPDS 25-1228). Nos difratogramas das amostras calcinadas (Figura 13b) observa-se o desaparecimento da fase segregada de hematita, indicando que a temperatura de calcinação forneceu a energia necessária para a formação monofásica da fase espinélio desejada $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Cu}_x\text{Zn}_{0,5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ (ficha JCPDF 48-0489), evidenciada pelos oito picos (111), (220), (311), (222), (400), (422), (511) e (440), que se mostraram mais intensos e estreitos. Logo, pode-se confirmar que a síntese pelo método de reação de combustão, embora seja uma técnica consolidada em pequenas escalas de produção (Dantas *et al.*, 2017; Leal *et al.*, 2018), o presente estudo vem mostrar sua eficiência na produção em escala piloto de 200 g/batelada de fases cerâmicas do tipo espinélio do sistema NiZnCu.

Na Tabela 6 estão os valores de tamanho de cristalito (Tc) e do grau de cristalinidade (Xc) das amostras com composições NZ, NZC2 e NZC3. Observa-se que o tamanho de cristalito das amostras sintetizadas varia entre 20,77 a 26,51 nm referente à NZC2 e NZC3, respectivamente, e as calcinadas varia entre 60,09 a 88,83 nm referente à NZC312 e NZ12, respectivamente. De forma geral, para as amostras calcinadas nota-se que ocorreu uma leve redução do tamanho de cristalito com a adição do cobre. O grau de cristalinidade das amostras sintetizadas varia de 54,2 a 58,4% referente à NZC3 e NZ, respectivamente, e as calcinadas variam de 73,4 a 82,0% referente à NZC212 e NZ12, respectivamente. De forma geral, nota-se que ocorreu uma leve redução do grau de cristalinidade ao adicionar o cobre.

Tabela 6 – Tamanho de cristalito e grau de cristalinidade da ferrita Ni-Zn dopadas com cobre com as composições $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0; 0,1; 0,15$ mol de Cu) como sintetizadas e calcinadas.

Amostras	Tc (nm)	Xc (%)
NZ	22,97	58,4
NZ12	88,83	82,0
NZC2	20,77	58,4
NZC212	75,55	73,4
NZC3	26,51	54,2
NZC312	60,09	78,4

4.3 Análise química por fluorescência de raios X por energia dispersiva (EDX)

A Tabela 7 descreve os valores experimentais da análise semi-quantitativa dos óxidos presentes nas amostras, como sintetizadas e calcinadas, determinadas por EDX.

Tabela 7 - Percentuais de óxidos teóricos e experimentais determinados por fluorescência de raios X (EDX) para as amostras das ferritas espinélios.

Amostras	Óxidos (%)				
	NiO	ZnO	Fe ₂ O ₃	CuO	Outros
NZ	E – 16,263	E – 14,855	E – 68,882		
	T – 15,712	T – 17,113	T – 67,175	-	-
	D – 0,551	D - -2,258	D – 1,707		
NZ12	E – 14,762	E – 16,359	E – 68,879		
	T – 15,712	T – 17,113	T – 67,175	-	-
	D – 0,950	D - -0,754	D – 1,704		
NZC2	E – 13,324	E – 11,816	E – 69,353	E – 5,508	
	T – 12,554	T – 13,673	T – 67,089	T – 6,684	-
	D – 0,770	D - -1,874	D – 2,264	D - -1,176	
NZC212	E – 13,014	E – 11,261	E -70,697	E – 4,690	E – 0,339 ^a
	T – 12,554	T – 13,673	T – 67,089	T – 6,684	
	D – 0,460	D - -2,429	D – 3,608	D - -1,994	
NZC3	E - 11,530	E – 12,210	E – 69,193	E – 7,067	
	T – 10,978	T – 11,956	T – 67,047	T – 10,019	
	D – 0,552	D – 0,254	D – 2,146	D - -2,952	
NZC312	E – 11,459	E – 11,576	E – 70,663	E – 6,173	E – 0,130 ^b
	T – 10,978	T – 11,956	T – 67,047	T – 10,019	
	D – 0,481	D - -0,380	D – 3,616	D - -3,846	

Onde: T – teórico, E – experimental e D – diferença do valor experimental em relação ao valor teórico.

^a Impurezas: Al₂O₃ (0,202%), SiO₂ (0,137%).

^b Impurezas: SiO₂ (0,130%).

Observou-se que os percentuais experimentais dos óxidos de NiO, ZnO, Fe₂O₃ e CuO apresentaram valores próximos aos obtidos teoricamente, indicando que a reação manteve-se próxima a estequiometria prevista teoricamente para estes íons. Ou seja, a diferença entre os valores, teórico e experimental, variou entre -3,8 a 3,60% referente à NZC312 aos íons CuO e Fe₂O₃, respectivamente.

4.4 Espectroscopia na região de infravermelho por transformada de Fourier (FTIR)

A Figura 14 ilustra os espectros de FTIR na faixa de 4000 a 200 cm^{-1} para as amostras como sintetizadas e calcinadas a $1200^\circ\text{C}/1\text{h}$ para os sistemas NZ, NZC2 e NZC3. Os espectros auxiliam na confirmação da estrutura de espinélio.

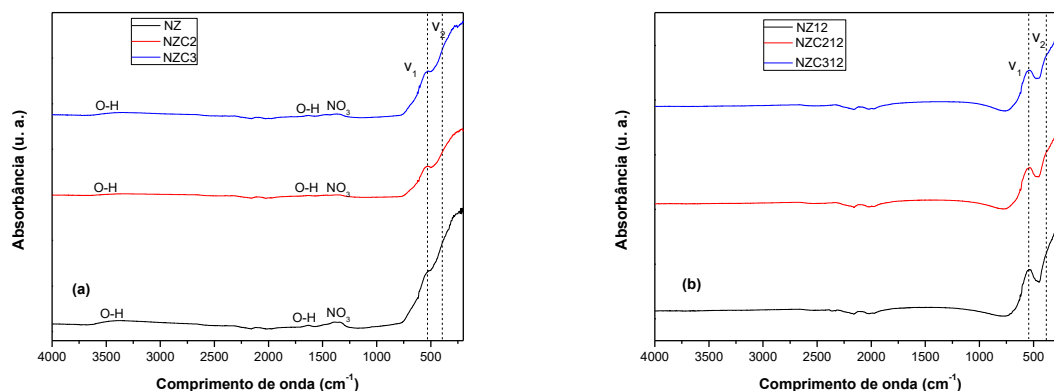


Figura 14 – Espectroscopia das amostras $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0; 0,1; 0,15$ mol de Cu) (a) como sintetizadas e (b) calcinadas a $1200^\circ\text{C}/1\text{h}$.

Os espectros apresentam duas bandas de absorção, v_1 e v_2 , identificadas abaixo de 1000 cm^{-1} que são características de ferritas cristalinas do tipo espinélio (El-Sayed, 2002). A banda v_1 a cerca de 550 cm^{-1} pode ser atribuída às vibrações intrínsecas do grupo Fe-O localizados nos sítios tetraédricos. Segundo Houshiar e Jamilpanah (2018) a banda v_2 provavelmente é localizada em torno de 400 cm^{-1} que pode ser atribuída às vibrações intrínsecas do grupo Fe-O nos sítios octaédricos.

As vibrações nos sítios tetraédricos são mais definidas do que as dos sítios octaédricos, pois o comprimento da ligação é menor do que a do comprimento da ligação nos sítios octaédricos (Shirsath *et al.*, 2011). Isso reflete em uma visualização mais nítida da banda de absorção localizada nos sítios tetraédricos (banda v_1).

Além das bandas v_1 e v_2 , os espectros das amostras apresentaram outras bandas. Nas amostras como sintetizadas no comprimento de onda da faixa de aproximadamente de 1378 cm^{-1} , encontra-se uma banda característica que possivelmente é reflexo do grupo $-\text{NO}_3$ que é proveniente dos resíduos de nitratos que não entraram em combustão durante síntese. Na faixa de 1660 cm^{-1} e 3426 cm^{-1} foram observados bandas características do grupo O-H que se referem à água livre

e/ou fisicamente adsorvida e aos grupos hidroxilas, comprovando assim a presença da água.

4.5 Distribuição granulométrica

Nas Figuras 15, 16 e 17 ilustram as curvas de distribuição granulométrica dos valores referentes aos diâmetros esféricos equivalentes das partículas em função do volume cumulativo das ferritas NZ, NZC2 e NZC3, sintetizadas e calcinadas a 1200 °C/1h.

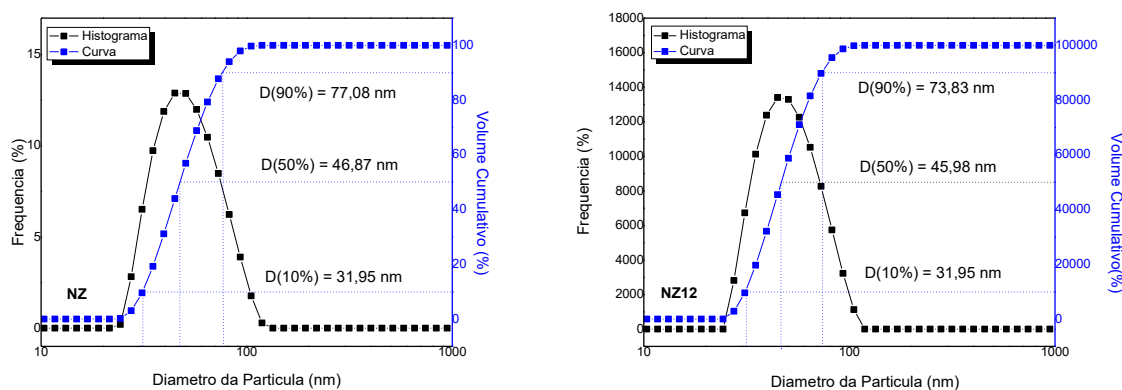


Figura 15 – Distribuição granulométrica para as amostras NZ e NZ12.

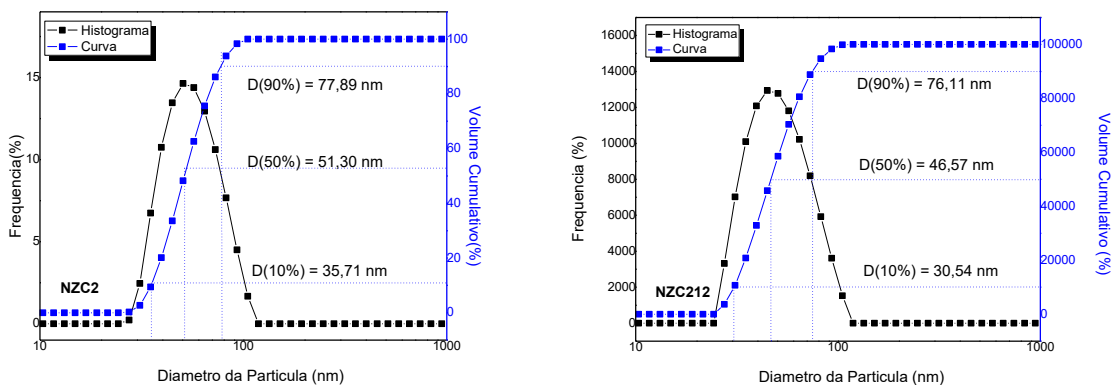


Figura 16 – Distribuição granulométrica para as amostras NZC2 e NZC212.

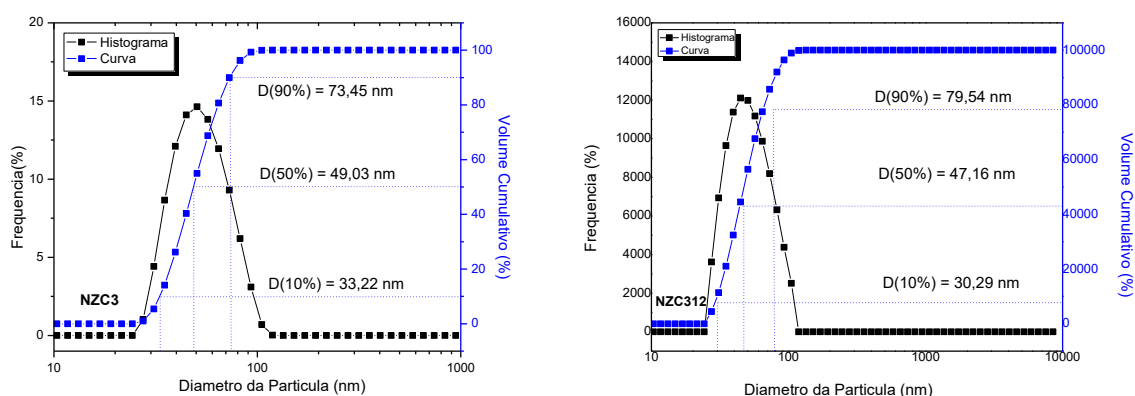


Figura 17 – Distribuição granulométrica para as amostras NZC3 e NZC312.

Observa-se por meio das curvas (Figuras 15, 16 e 17) uma distribuição relativamente larga, exibindo um comportamento simétrico e monomodal, cujos diâmetros medianos (50%) são de 46,87; 51,30 e 49,03 nm para NZ, NZC2 e NZC3, respectivamente, e 45,98; 46,57 e 47,16 nm para NZ12, NZC212 e NZC312, respectivamente. Assim, ambos apresentaram curvas com praticamente a mesma largura, sem grandes variações na distribuição e nos diâmetros médios de partículas.

Na Tabela 8 estão os valores referentes aos diâmetros das partículas das ferritas NZ, NZC2 e NZC3, sintetizadas e calcinadas a 1200 °C/1h, de acordo com os índices de distribuição de tamanho de partícula D (10%), D (50%) e D (90%), respectivamente. Os parâmetros D (10%) e D (90%) estão correlacionados aos diâmetros de corte da curva de distribuição acumulada em 10% e 90%, respectivamente, enquanto que, o parâmetro D (50%) está correlacionado à mediana da distribuição.

De forma geral, observa-se que os valores referentes à distribuição granulométrica apresentaram pequenas variações, ou seja, tanto a presença do cobre na rede Ni-Zn como o tratamento térmico não proporcionaram mudanças efetivas no diâmetro das partículas.

Tabela 8 - Diâmetros das partículas para $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0; 0,1; 0,15$ mol de Cu) ($x = 0; 0,1; 0,15$ mol de Cu) como sintetizadas e calcinadas a $1200^\circ\text{C}/1\text{h}$, de acordo com os índices de distribuição.

Amostras	D (10%) (nm)	D (50%) (nm)	D (90%) (nm)
NZ	31,95	46,87	77,08
NZ12	31,95	45,98	73,83
NZC2	35,71	51,30	77,89
NZC212	30,54	46,57	76,11
NZC3	33,22	49,03	73,45
NZC312	30,29	47,16	79,54

4.6 Análise textural por adsorção/dessorção de N_2 (BET/BJH)

Na Figura 18 encontram-se as isotermas de adsorção/dessorção de N_2 como resultado da análise textural das amostras NZ, NZC2 e NZC3 como sintetizadas e calcinadas a $1200^\circ\text{C}/1\text{h}$.

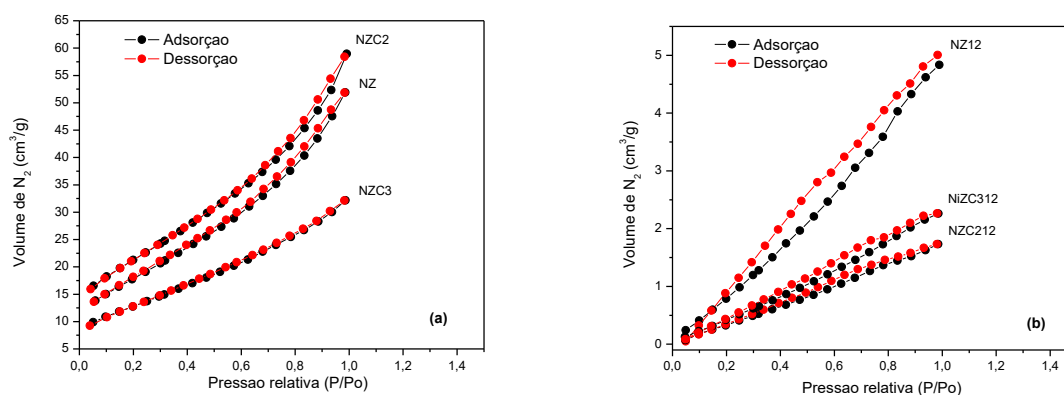


Figura 18 – Isotermas de adsorção/dessorção de N_2 para as amostras de $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0; 0,1; 0,15$ mol de Cu) (a) Como sintetizadas e (b) calcinadas a $1200^\circ\text{C}/1\text{h}$.

De acordo com a classificação da IUPAC, pode-se dizer que as amostras como sintetizadas (Figura 18a) apresentam isotermas do tipo II mesclado com tipo IV que é típico de materiais mesoporosos e macroporosos podendo apresentar regiões não porosas. As amostras calcinadas (Figura 18b) apresentam isotermas do tipo IV que é função de um material mesoporoso (Sing, 1985). As isotermas de adsorção (linha preta) mostram que o volume de nitrogênio adsorvido aumenta com o aumento da pressão relativa.

Quanto às histereses, as amostras como sintetizadas apresentam curvas do tipo H3, com aglomerados semelhantes a placas dando origem a poros em forma de fenda (Sing, 1985), enquanto as amostras calcinadas apresentam do tipo H2. Outro fator observado foi que as amostras não calcinadas (Figura 18a) tiveram um maior volume de N₂ adsorvido quando comparado com as amostras calcinadas (Figura 18b). Isto pode ser explicado pelo aumento do tamanho das partículas favorecido pelo processo de calcinação, que conseqüentemente reduziu a área superficial e porosidade, e então, reduziu volume de N₂ adsorvido em sua superfície.

Na Tabela 9 estão descrito os valores da área superficial (S_{BET}), tamanho de partícula (D_{BET}), volume do poro (V_P) e raio do poro (R_P) referente às amostras NZ, NZC2 e NZC3 como sintetizadas e calcinadas a 1200°C/1h.

Os dados apresentados revelam que o maior valor da área superficial entre as amostras como sintetizadas foi de 75,044 m²g⁻¹ referente à NZC2 e o menor foi de 45,469m²g⁻¹ referente a NZC3. Nas amostras calcinadas o maior valor da área superficial foi de 5,851m²g⁻¹ para a amostra NZ e o menor 2.867m²g⁻¹ para NZC3.

No qual pode-se dizer que o processo de calcinação favoreceu o crescimento do tamanho de partícula, a redução do volume de poro, e conseqüentemente, a redução da área superficial das amostras.

Tabela 9 - Valores de área superficial específica, tamanho de partícula, volume e raio de poro para Ni_{0,5-x}Zn_{0,5-x}Cu_{2x}Fe₂O₄ (x = 0;0,1; 0,15 mol de Cu) como sintetizadas e calcinadas a 1200°C/1h.

Amostras	S_{BET} (m²g⁻¹)	D_{BET} (nm)	V_P(cm³.g⁻¹)	R_p (Å)
NZ	64,341	20,9	0,059	16,755
NZ12	5,851	160,5	0,007	16,692
NZC2	75,044	16,1	0,066	16,629
NZC212	3,099	377,0	0,002	16,797
NZC3	45,469	23,5	0,034	16,716
NZC312	2,867	349,1	0,003	16,764

De forma geral, notou-se que ao adicionar o cobre na estrutura da ferrita Ni-Zn houve um aumento no tamanho de partícula das amostras e, conseqüentemente, uma redução na área superficial. Também observou que a adição do cobre

favoreceu a diminuição do volume de poro, indicando a possível redução de poros interpartículas, exceção dada à amostra NZC2 como sintetizada.

Dantas *et al.* (2016) quando obtiveram as ferritas $\text{Ni}_{0,5}\text{Zn}_{0,5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ e $\text{Ni}_{0,2}\text{Cu}_{0,3}\text{Zn}_{0,5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ por reação de combustão, observaram áreas superficiais com valores de 48,89 e 29,89 m^2g^{-1} , respectivamente. Valores estes que são inferiores aos das amostras como sintetizadas do presente estudo.

4.7 Análise termogravimétrica (TGA)

Na Figura 19 estão às curvas de análise termogravimétrica das amostras NZ, NZC2 e NZC3 como sintetizadas e calcinadas a 1200 °C/1h. .

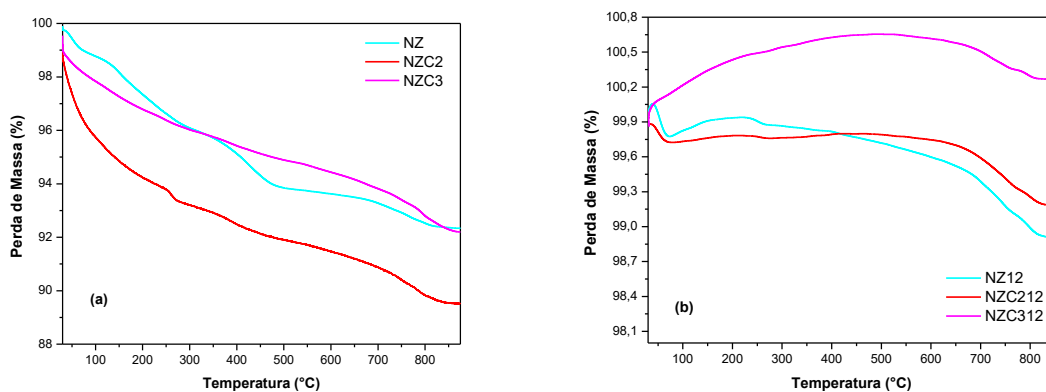


Figura 19 – Curvas de análise termogravimétrica das $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0; 0,1; 0,15$ mol de Cu) (a) como sintetizadas e (b) calcinadas a 1200°C/1h.

De acordo com as curvas de TGA, observa-se que as amostras calcinadas se mostraram estáveis na faixa de temperatura analisada (30-870°C), apresentando perdas de massa de apenas 7,46%, 10,16% e 7,34% para amostras NZ, NZC2 e NZC3, respectivamente. Dentre as amostras como sintetizadas, as perdas de massa que ocorre entre 30-200°C podem ser atribuídas à saída de material volátil, mais especificamente saída de moléculas de água, provenientes da dissolução dos precursores hidratados utilizados nas sínteses. No intervalo de 200-400°C, a perda de massa pode ter relação à queima de carbono. Na faixa de temperatura de 400-600°C, a perda de massa está mais acentuada para a curva da ferrita NiZn, e ainda tem relação com a queima de carbono. A partir de 600°C tem início a volatilização de Zn^{2+} da fase ferrita e carbono residual (Bezerra, 2007).

Notou-se que as amostras calcinadas apresentaram um comportamento atípico, pois as curvas ilustram o ganho de massa. Provavelmente, esse

comportamento é resultado da oxidação do cobre, que foi observado no estudo de CuO (Narushima, Tsukamoto e Yonezawaa, 2012).

4.8 Densidade experimental por picnometria a gás hélio

Na Tabela 10 estão os valores referentes às densidades médias das amostras NZ, NZC2 e NZC3 como sintetizadas e calcinadas a 1200 °C/1h.

Tabela 10 - Densidade média da ferrita $Ni_{0,5-x}Zn_{0,5-x}Cu_{2x}Fe_2O_4$ ($x = 0; 0,1; 0,15$ mol de Cu) como sintetizadas e calcinadas a 1200°C/1h.

Amostras	Densidade Média (g/cm ³)
NZ	4,4507 ± 0,0290
NZ12	6,6387 ± 0,0099
NZC2	4,9412 ± 0,0052
NZC212	5,1353 ± 0,0090
NZC3	5,6054 ± 0,0059
NZC312	5,9940 ± 0,0094

Por meio dos valores das densidades médias, contidas na Tabela 10, é possível observar que as amostras se tornaram mais densa com o aumento do teor de cobre e ao serem submetidas à calcinação, exceção dada à amostra NZC212. Isso só é possível porque a massa atômica no Cu^{2+} ($A = 63,54$ uma) é maior do Ni^{2+} ($A = 58,69$ uma) e próximo que do Zn^{2+} ($A = 65,38$ uma) e quando uma amostra é submetida à calcinação as partículas crescem e diminuem o tamanho dos poros. Com base na densidade teórica da ferrita NZ, ($\rho = 5,361g/cm^3$), as densidades médias das amostras variam entre 16,98% menos densa e 23,80% mais densa que o valor teórico, referente as amostras NZ e NZ12, respectivamente.

4.9 Microscopia eletrônica de varredura (MEV)

Nas Figuras 20, 21 e 22 estão apresentadas as micrografias dos pós das ferritas NZ, NZC2 e NZC3 como sintetizadas e calcinadas a 1200 °C/1h.

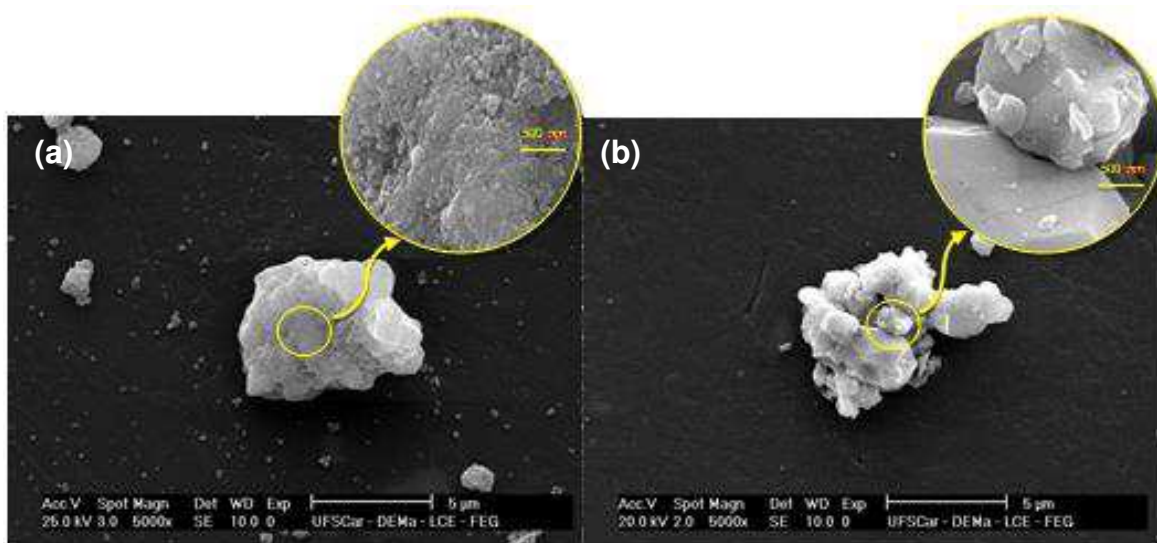


Figura 20 – Micrografias obtidas por MEV das amostras (a) NZ e (b) NZ12.

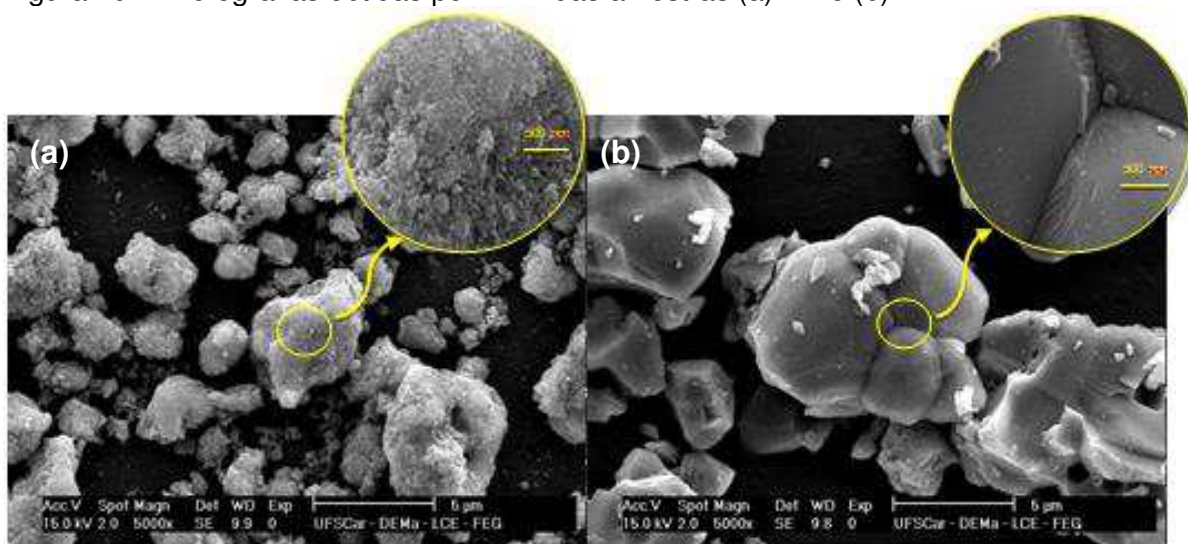


Figura 21 - Micrografias obtidas por MEV das amostras (a) NZC2 e (b) NZC212.

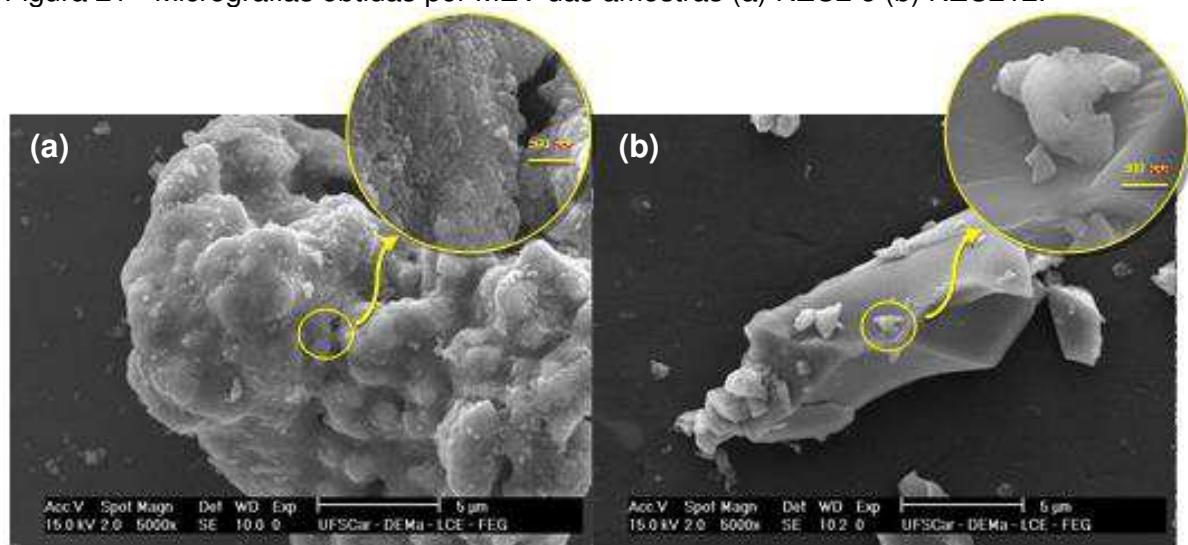


Figura 22 - Micrografias obtidas por MEV das amostras (a) NZC3 e (b) NZC312.

De modo geral, observa-se que todas as amostras apresentam aglomerados de partículas de formas irregulares e com tamanhos maiores e menores que 5 μm . Dentre as amostras não calcinadas, observa-se aglomerados formados por partículas finas, o que é característico de pós calcinados por reação de combustão, como resposta a grande evolução de gases gerados durante a síntese. Leal *et al.* (2018) quando sintetizaram ferritas espinélios MFe_2O_4 ($\text{M} = \text{Cu}, \text{Ni}, \text{Co}, \text{Mn}$ e Fe) por reação de combustão, também observaram aglomerados com aparência friável de partículas fracamente ligadas, características do método de síntese. Nas micrografias das amostras calcinadas a $1200^\circ\text{C}/1\text{h}$, observa-se aglomerados também de formatos irregulares, porém com aparência mais densa, livres de poros interpartículas, e indícios de grãos pré-calcinados.

4.10 Medidas magnéticas

Na Figura 23 estão presentes as curvas de histerese da ferrita $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0; 0,1$ e $0,15$ mol de cobre) como sintetizada e calcinada a $1200^\circ\text{C}/1\text{h}$. Pode-se observar que as curvas das ferritas NiZn e dopadas com cobre antes e após o tratamento térmico apresentaram características de material magneticamente mole, pois o ciclo $\sigma \times H$ compreendida pela curva de histerese é estreita, portanto, de fácil magnetização e desmagnetização. O comportamento magnético mole é característico de materiais que apresentam baixos campos coercitivos e alta permeabilidade magnética final em altas frequências (10-500 MHz) (Sugimoto, 1999; Tsayet al., 2000).

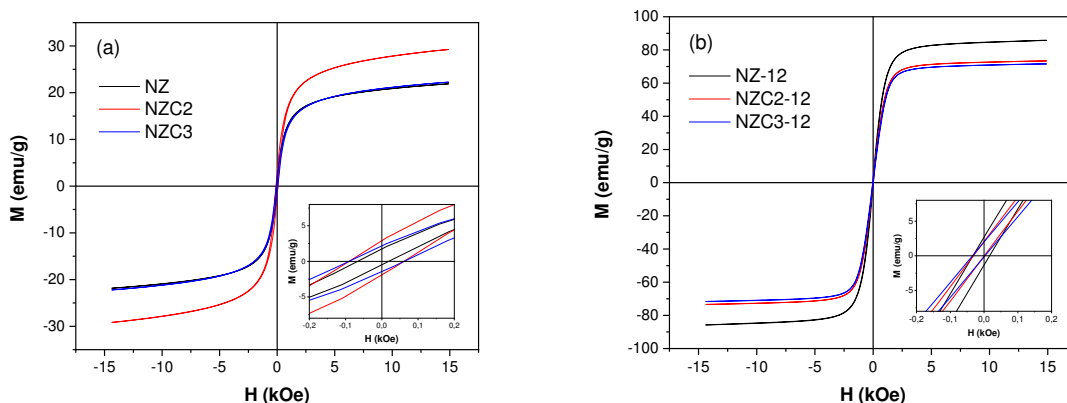


Figura 23 - Curvas de histerese para as ferritas $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0; 0,1$ e $0,15$ mol de cobre) (a) como sintetizadas e (b) calcinadas a $1200^\circ\text{C}/1\text{h}$.

Na Tabela 11 encontram-se os valores dos parâmetros magnéticos retirados da histerese das ferritas $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0; 0,1$ e $0,15$ mol de cobre) como sintetizadas e calcinadas a $1200\text{ }^\circ\text{C}/1\text{h}$.

Tabela 11 – Parâmetros magnéticos das ferritas $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0; 0,1$ e $0,15$ mol de cobre) sintetizadas e calcinadas a $1200\text{ }^\circ\text{C}/1\text{h}$.

Amostras	Ms (emu/g)	Mr (emu/g)	Hc (Oe)	Ms/Mr
NZ	21,88	1,72	160	12,86
NZ12	85,77	2,63	180	32,31
NZC2	29,37	2,99	590	9,37
NZC212	73,39	2,16	10	33,97
NZC3	22,34	2,13	600	10,48
NZC312	71,60	2,01	20	35,62

Observa-se por meio dos dados da Tabela 11 que o comportamento da magnetização de saturação das amostras sintetizadas não sofre mudanças lineares, pois a Ms da NZC2 aumenta e da NZC3 diminui. Segundo Ruiz *et al.*(2013), esse comportamento pode ser justificado seguindo alguns conceitos do modelo de Néel, considerando que o momento magnético teórico para os íons $\text{Cu}^{2+} = 1\text{ }\mu\text{B}$, $\text{Ni}^{2+} = 2\text{ }\mu\text{B}$, $\text{Zn}^{2+} = 0\text{ }\mu\text{B}$ e $\text{Fe}^{3+} = 5\text{ }\mu\text{B}$ e os sítios preferenciais de Zn^{2+} e Ni^{2+} são os sítios A e B, respectivamente, enquanto Fe^{3+} e Cu^{2+} podem estar presentes em ambos os sítios, embora mostrem preferência pelo sítio B. No entanto, para baixos teores de cobre, ou seja, que variam de 0 a 0,2 mol, alguns íons de Cu^{2+} podem migrar dos sítios B para A (isto é, solubilidade limitada de Cu^{2+} na sub-rede B). Assim, uma migração de íons Fe^{3+} ocorre na direção oposta, isto é, dos sítios A para B, alterando a estrutura magnética da ferrita substituída e levando a um aumento da magnetização total com o teor de cobre. Para concentrações de cobre acima de 0,2 mol ocorrem maiores migrações de Fe^{3+} para os sítios B, introduzindo uma diminuição na interação de super-troca A-B, e conseqüentemente, favorece a diminuição da magnetização de saturação da amostra. Além disso, nota-se que o aumento do teor do cobre no sistema NiZn aumentou a magnetização remanente e o campo coercitivo.

Após o tratamento térmico notou-se que a magnetização de saturação aumentou. Esse comportamento pode ser explicado, pois o processo de calcinação

favorece o crescimento do grão, no entanto, quanto maior o tamanho de grão, menor será a área de contornos de grão e mais fácil será o deslocamento da parede de domínios, conseqüentemente, maior será a magnetização (Torquato *et al.*, 2008). O campo coercitivo diminuiu, segundo Lima *et al.*(2008), devido ao aumento do tamanho do cristal indicando que múltiplos domínios são formados e a magnetização remanente diminuiu. Qinghui *et al.* (2012) quando estudaram o efeito da sinterização por micro-ondas sobre as propriedades magnéticas da ferrita NiCuZn sintetizada por reação no estado sólido, observaram um aumento crescente na magnetização de saturação, passando de 22 emu/g para 40 emu/g nas amostras calcinadas a 820°C e 970°C, respectivamente. Os autores também atribuíram esse comportamento ao aumento do tamanho de grão e da densidade com o aumento da temperatura de sinterização.

4.11 Análise eletromagnética

Nas Figuras 24, 25 e 26 encontram-se as curvas de refletividade versus frequência referente às ferritas $\text{Ni}_{0,5-x}\text{Zn}_{0,5-x}\text{Cu}_{2x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0; 0,1$ e $0,15$ mol de cobre) como sintetizadas e calcinadas a 1200 °C/1h.

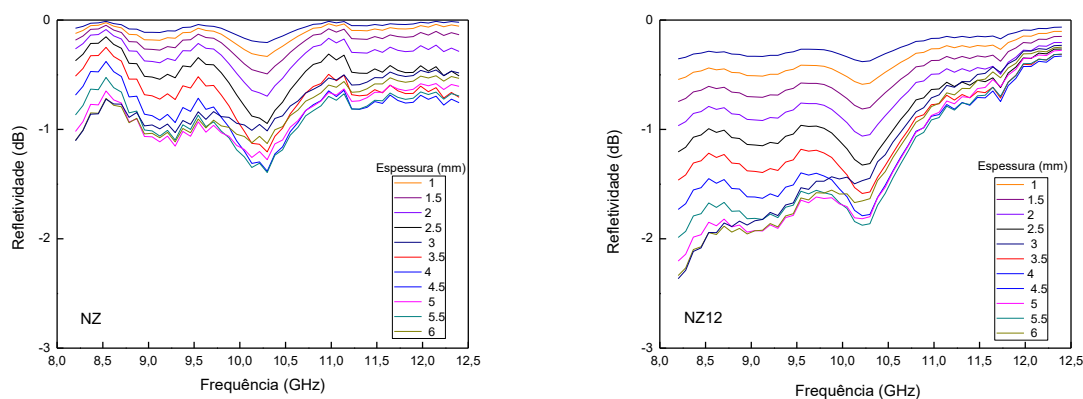


Figura 24 - Curvas de refletividade versus frequência das amostras NZ e NZ12.

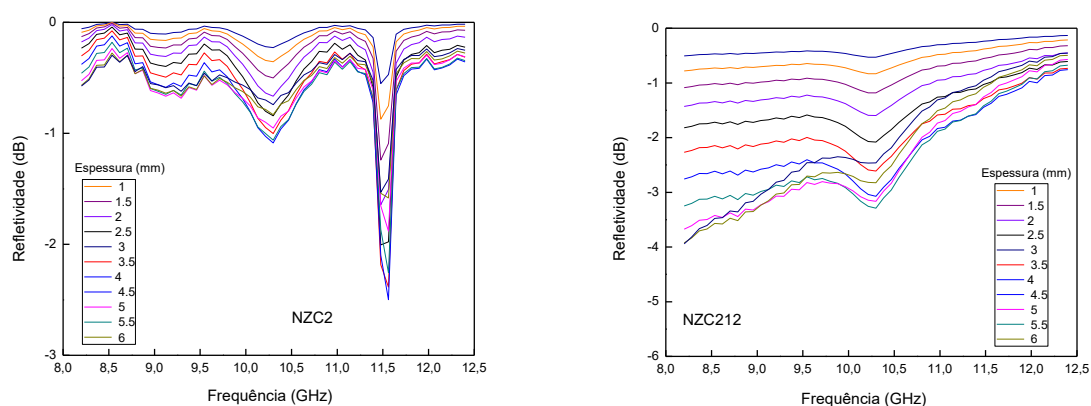


Figura 25 - Curvas de refletividade versus frequência das amostras NZC2 e NZC212

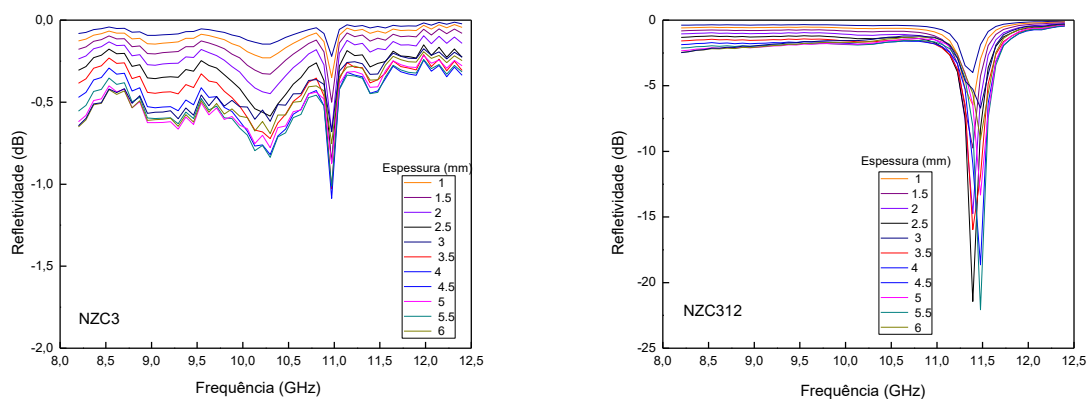


Figura 26 – Curvas de refletividade versus frequência das amostras NZC3 e NZC312.

Observa-se que tanto a adição de cobre ao sistema NiZn, quanto o processo de calcinação das amostras, influenciam no comportamento da refletividade em função da frequência. Todas as amostras como sintetizadas, NZ, NZC2 e NZC3, apresentaram refletividade superior a -3 dB em toda a faixa de frequência entre 8 e 12 GHz, o que significa uma absorção de radiação incidente inferior a 50%. Dentre as amostras calcinadas a 1200°C/1h, observa-se que a adição do cobre, em especial no teor de 0,3 mols (NZC312), favoreceu a uma refletividade de -22 dB, ou seja, uma absorção de mais de 99% da radiação incidente na frequência em torno de 11,5 GHz para a espessura de 5,5 mm.

A amostra NZC212 apresentou uma refletividade de -4 a -3 dB na faixa de 8 a 10,5 GHz, correspondendo a uma absorção da energia incidente em torno de 55%, enquanto que a amostra NZ12, sem a dopagem do cobre, assim como as amostras não calcinadas, apresentou absorção inferior a 50%. Logo, ao comparar as amostras como sintetizadas com as calcinadas, nota-se que o aumento no tamanho de partícula proporcionado pelo tratamento térmico (Tabela 9), levaram ao aumento

significativo na absorção da radiação incidente, além de um deslocamento dos picos de absorção para faixas de frequências menores, aumentando assim o intervalo de absorção de energia eletromagnética. Comportamento semelhante foi observado por Andreev *et al.* (2015) que ao adicionar 1% de Bi₂O₃ a ferrita NiZn, proporcionou um aumento no tamanho de partícula do material, melhorando assim suas propriedades de absorção de energia eletromagnética e expandindo o intervalo de absorção na faixa de 0,3 a 1300 MHz.

5 CONCLUSÃO

De acordo com os resultados obtidos, pode-se concluir que o método de reação de combustão foi eficiente na obtenção da fase desejada das ferritas Ni_{0,5-x}Zn_{0,5-x}Cu_{2x}Fe₂O₄ ($x = 0; 1$ e $1,5$ mol de Cu) com características manométricas. De forma geral, o aumento da concentração de cobre favoreceu o crescimento das partículas, a diminuição da área superficial e menor volume de poro e a calcinação contribuiu de forma efetiva para o crescimento das partículas, levando a uma diminuição da área superficial.

Do ponto de vista estrutural e morfológico, a adição do cobre ao sistema NiZn fez diminuir o tamanho de cristalito, o grau de cristalinidade, o tamanho de partícula e a área superficial. Após tratamento térmico, as amostras apresentaram maior tamanho de cristalito, grau de cristalinidade, tamanho de partícula e menor área superficial. Quanto às propriedades magnéticas dentre as amostras não calcinadas, a adição do cobre causou um leve aumento dos valores de magnetização de saturação e coercividade, enquanto que nas amostras calcinadas, o comportamento foi inverso, pois a adição do cobre fez reduzir a magnetização de saturação e a coercividade. Todas as amostras apresentaram comportamento de material magnético mole.

Com relação às propriedades eletromagnéticas, o aumento do tamanho de partícula causado pelo processo de calcinação, bem como a adição de cobre no teor de 0,3 mols na estrutura da ferrita NiZn, permitiu uma absorção da radiação incidente acima de 99%, na faixa de frequência em torno de 11,5 GHz, podendo se confirmar sua eficiência como material absorvedor de radiação eletromagnética de banda estreita.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ABBAS, S.; CHANDRA, M.; VERMA, A.; CHATTERJEE, R.; GOEL, T. Complex permittivity and microwave absorption properties of a composite dielectric absorber. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, v. 37, n. 11, p. 2148-2154, 2006.

AÇIKALIN, E.; ÇOBAN, K.; SAYINTI, A. Nanosized hybrid electromagnetic wave absorbing coatings. *Progress in Organic Coatings*, v. 98, p. 2-5, 2016.

ALI, N. N.; ATASSI, Y.; SALLOUM, A.; CHARBA, A.; MALKI, A.; JAFARIAN, M. Comparative Study of microwave absorption characteristics of (Polyaniline/NiZn Ferrite) nanocomposites with different ferrite percentages. *Materials chemistry and physics*, 2018.

ALVES, G. **Como o radar funciona?** Disponível em: <<https://www.dicasecuriosidades.net/2018/08/como-o-radar-funciona.html>> Acesso em: 25/11/2019.

ANATEL, Agência Nacional de Telecomunicação, **Plano de Destinação das Faixas de Frequências**, acessado e disponível em: <[HTTP://sistemas.anatel.gov.br/pdf/Consulta/Consulta.Asp?intPagina=1&intLivro=0](http://sistemas.anatel.gov.br/pdf/Consulta/Consulta.Asp?intPagina=1&intLivro=0)>.

ANDREEV, V.G., MENSHOVA, S.B., KLIMOV, A.N., VERGAZOV, R.M., BIBIKOV, S.B., PROKOFIEV, M.V. Influence of microstructure on properties of Ni–Zn ferrite radio-absorbing materials. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, v. 394, p.1–6, 2015.

ARAÚJO, P. M. A. G.; SANTOS, P. T. A.; JUNIOR, A. S.; VIANA, R. S.; COSTA, A. C. F. M. Modificação da superfície do $ZnAl_{1.9}Eu_{0.05}O_4$ visando a obtenção do híbrido $ZnAl_{1.9}Eu_{0.05}O_4/SiO_2$ para aplicação como biossensor. *Cerâmica*, v 63, p. 122-127, 2017.

BALANIS, C. A. *Advanced electromagnetic engineering*. Publishers: **John Wiley and Son**, 1989.

BEZERRA, M. J. O. S. **Síntese e caracterização da ferrita de MnZn obtida pelo método dos citratos precursores**. 112 f. Dissertação de Mestrado em Química. Universidade Federal do Rio Grande do Norte. Natal, 2007.

BUENO, A. R. **SÍNTESE E CARACTERIZAÇÃO DA FERRITA DE NiZn DOPADA COM ÍONS METÁLICOS PARA APLICAÇÕES EM ABSORVEDORES DE RADIAÇÕES ELETROMAGNÉTICAS**. 2003. 184. (Doutor). Engenharia Metalúrgica e de Materiais, UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO, Rio de Janeiro.

BUENO, A. R.; GREGORI, M. L.; NÓBREGA, M. C. Microwave-absorbing properties of $Ni_{0.50-x}Zn_{0.50-x}Me_{2x}Fe_2O_4$ (Me = Cu, Mn, Mg) ferrite–wax composite in X-band

frequencies. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 320, n. 6, p. 864-870, 2008.

CHEN, L.-F.; ONG, C.; NEO, C.; VARADAN, V.; VARADAN, V. K. **Microwave electronics: measurement and materials characterization**. John Wiley & Sons, 2004. ISBN 0470020458.

CHEPARIN V. P; et al. PROCEEDINGS OF XI ICMF. Moscow. Magneto-oneaxial hexaferrites as filling for currentless radioabsorbing materials. v. 5, p.78-80, 1992.

CHOI, E. J.; AHN, Y.; SONG, K.-C. Mössbauer study in zinc ferrite nanoparticles. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 301, n. 1, p. 171-174, 2006.

COLLIN, R. E. Foundations for microwave engineering. **New York: John Wiley & Sons**, p. 924, 2001.

COLIN, R. Foundations of microwave engineering. **McGraw Hill**; 1966.

COSTA, A.; KIMINAMI, R. Dispositivo para produção de nanomateriais cerâmicos em larga escala por reação de combustão e processo contínuo de produção dos nanomateriais. **Rev. Propriedade Ind.**, nº **BR**, v. 10, p. 002181-3, 2012.

COSTA, A.; TORTELLA, E.; MORELLI, M.; KAUFMAN, M.; KIMINAMI, R. Effect of heating conditions during combustion synthesis on the characteristics of $\text{Ni}_{0.5}\text{Zn}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ nanopowders. **Journal of Materials Science**, v. 37, n. 17, p. 3569-3572, 2002.

COSTA, A. C. F. D. M.; DINIZ, A. P. A.; DE SOUTO VIANA, K. M.; CORNEJO, D.; KIMINAMI, R. H. 6. Ferritas $\text{Ni}_{0.5}\text{Zn}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ dopada com samário: análise estrutural, morfológica e eletromagnética. **Revista Eletrônica de Materiais e Processos**, v. 5, n. 3, 2010.

DA SILVA, M.; COUTINHO, J.; COSTA, A.; KIMINAMI, R. **Síntese por reação de combustão e caracterização de nanoferritas Ni-Zn: Estudo dos combustíveis anilina, ácido cítrico e sua mistura**. 2012.

DANTAS, J.; ELVIA LEAL; ANTÔNIO BENJAMIM MAPOSSA; ADRIANO SANT'ANA SILVA; COSTA, A. C. F. D. M. Síntese, caracterização e performance catalítica de nanoferritas mistas submetidas a reação de transesterificação e esterificação via rota metálica e etílica para biodiesel. **Revista Matéria**, v. 21, n. 4, p. 1080-1093, 2016.

DANTAS, J.; LEAL, E.; MAPOSSA, A. B.; CORNEJO, D. R.; COSTA, A. C. F. M. Magnetic nanocatalysts of $\text{Ni}_{0.5}\text{Zn}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ doped with Cu and performance evaluation in transesterification reaction for biodiesel production. **Fuel**, v. 191, p. 463-471, 2017.

DANTAS, J.; LEAL, E.; CORNEJO, D. R.; KIMINAMI, R. H. G. A.; COSTA, A. C. F. M. Biodiesel production evaluating the use and reuse of magnetic nanocatalysts

$\text{Ni}_{0.5}\text{Zn}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ synthesized in pilot-scale. **Arabian Journal Chemistry**, 2018. In Press.

DEFESA. **Conheça 4 tecnologias militares que inadvertidamente ou não vieram à tona.** Disponível em: <<https://br.sputniknews.com/defesa/2018062411551910-vazamento-tecnologias-militares-armas-j20-status6-sea-shadow-k2/>> Acesso em: 26/11/2019.

DEFESA. **Estas são as aeronaves mais 'invisíveis' do mundo**<<https://br.sputniknews.com/defesa/2019012813201532-aeronaves-mais-invisiveis-mundo/>> Disponível em 25/11/2019.

DE FREITAS, N. L.; COUTINHO, J. P.; SILVA, M. C.; LIRA, H. L.; KIMINAMI, R. H. G. A.; DE MELO COSTA, A. C. F. Synthesis of Ni-Zn ferrite catalysts by combustion reaction using different fuels. In: **Materials Science Forum**, Trans Tech Publ, p.943-947, 2010.

DINIZ, V. C. S.; SILVEIRA JR. J. E. R.; CORNEJO, D. R.; KIMINAMI, R. H. G. A.; COSTA, A. C. F. M. Influência do teor de Zn^{2+} nas características morfológicas e magnéticas de ferritas $\text{Mn}_{1-x}\text{Zn}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$ sintetizados em grande escala por reação de combustão. **Cerâmica**, v. 63, p. 210-215, 2017.

DE LIMA, R. G. A. **Redução das incertezas em medidas de permeabilidade e permissividade complexas na faixa de 0,2 a 4 GHz em linhas coaxiais.** 2013. 82f. (Dissertação (Mestrado em Ciências e Tecnologias Espaciais)). Instituto Tecnológico de Aeronáutica, São José dos Campos.

EL-SAYED, A. Influence of zinc content on some properties of Ni-Zn ferrites. **Ceramics International**, v. 28, n. 4, p. 363-367, 2002.

ETS LINDGREN, **EMC Testing**, acessando e disponível em: <<http://www.emctest.com>>, dezembro de 2005.

FERREIRA, M.; LEITE, F.; NOVAIS, O.; RÓZ, A. **Nanoestruturas.** Elsevier Brasil, 2016. ISBN 8535280928.

FERREIRA, M. A. **O novo navio furtivo da marinha norte americana ... é furtivo demais!** Disponível em <<https://www.pcmánias.com/o-novo-navio-furtivo-da-marinha-norte-americana-e-furtivo-demais/>> Acesso em: 26/11/2019.

FUMO, D.; MORELLI, M.; SEGADAES, A. Combustion synthesis of calcium aluminates. **Materials Research Bulletin**, v. 31, n. 10, p. 1243-1255, 1996.

FURUNO FR – 7062/7112/7252 Operator's Manual Marine RADAR /AUTOHELM ST 50 Plus – **RADAR Operation and Installation Handbook** – Distributed by RAYMARINE, 2007.

GAMA, A. M.; MOURA, A.; REZENDE, M. C. **Desenvolvimento de materiais absorvedores de radiação eletromagnética à base de ferro carbonila e silicone.** In: VIII Simpósio de Guerra Eletrônica, São José dos Campos. 2006.

GOMIDE, G. S. **Propriedades magnéticas intrínsecas e coletivas de nanopartículas de ferritas mistas de Zn-Mn**. 2013. (Mestre). Universidade de Brasília, Brasília.

GONÇALVES, V. F. D. M. **Materiais Compósitos Estruturais Atenuadores de Radiação Eletromagnética (8,2-12,4 Ghz)**. 2016. 72. (Monografia). Universidade de Taubaté - UNITAU, Taubaté. .

GUO, Y.; ZHANG, L.; LIU, X.; LI, B.; TANG, D.; LIU, W.; QIN, W. Synthesis of magnetic core-shell carbon dot@MFe₂O₄ (M= Mn, Zn and Cu) hybrid materials and their catalytic properties. **Journal of Materials Chemistry A**, v. 4, n. 11, p. 4044-4055, 2016.

HARZALI, H.; SAIDA, F.; MARZOUKI, A.; MEGRICHE, A.; BAILLON, F.; ESPITALIER, F.; MGAIDI, A. Structural and magnetic properties of nano-sized NiCuZn ferrites synthesized by co-precipitation method with ultrasound irradiation. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 419, p. 50-56, 2016.

HASHIM, M.; RAGHASUDHA, M.; SHAH, J.; SHIRSATH, S. E.; RAVINDER, D.; KUMAR, S.; MEENAG, S. S.; BHATTG, P.; ALIMUDDINA; KUMARH, R.; KOTNALA, R. K. High temperature dielectric studies of indium-substituted NiCuZn nanoferrites. **Journal Physics and Chemistry of Solids**, v. 112, p. 29-36, 2018

HATAKEYAMA, K.; INUI, T. Electromagnetic wave absorber using ferrite absorbing material dispersed with short metal fibers. **IEEE Transactions on Magnetics**, v. 20, n. 5, p. 1261-1263, 1984.

HETTING, G. H. worl, HH Weiter. **Zeitschrift für anorganische und allgemeine Chemie**, v. 283, p. 207, 1956.

HOUSHIAR, M.; JAMILPANAH, L. Effect of Cu dopant on the structural, magnetic and electrical properties of Ni-Zn ferrites. **Materials Research Bulletin**, v. 98, p. 213-218, 2018.

IGARASHI, H.; OKAZAKI, K. Effects of porosity and grain size on the magnetic properties of NiZn ferrite. **Journal of the American Ceramic Society**, v. 60, n. 1-2, p. 51-54, 1997.

INPE, Instituto Nacional de Pesquisa Espaciais, **Laboratório de Integração e Testes – LIT**, acessado e disponível em: <<http://www.lit.inpe.br/>>, novembro de 2005.

JAIN, S.; ADIGA, K.; VERNEKER, V. P. A new approach to thermochemical calculations of condensed fuel-oxidizer mixtures. **Combustion and flame**, v. 40, p. 71-79, 1981.

JIANG, J.; GAO, L.; YANG, X.; GUO, J.; SHEN, H. Nanocrystalline NiZn ferrite synthesized by high energy ball milling. **Journal of materials science letters**, v. 18, n. 21, p. 1781-1783, 1999.

JIANG, N.-N.; YANG, Y.; ZHANG, Y.-X.; ZHOU, J.-P.; LIU, P.; DENG, C.-Y. Influence of zinc concentration on structure, complex permittivity and permeability of Ni–Zn ferrites at high frequency. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 401, p. 370-377, 2016.

JOB, A. E.; DE SIQUEIRA, A. F.; DANNA, C. S.; BELLUCCI, F. S.; CABRERA, F. C.; SILVA, L. E. K. Utilization of Composites and Nanocomposites Based on Natural Rubber and Ceramic Nanoparticles as Control Agents for Leishmania braziliensis. In: (Ed.). **Leishmaniasis-Trends in Epidemiology, Diagnosis and Treatment**: InTech, 2014. p.

KAZANTSEVA, N. E.; et al. INTERNATIONAL CONFERENCE ON CURRENTLESS SPIN-ELECTRONICS, 6, 1997, Firsanovka. **Control of electrodynamic and mechanical properties of highly filled magnetic fibers by changing processing conditions**. Rússia: Moscow Power Engineering Institute, 1997. p. 10

KIM, K.; KIM, W.; JU, Y.; JUNG, H. Effect of addition of the CuO-Fe₂O₃ system on the electromagnetic wave absorbing properties of sintered ferrite. **Journal of materials science**, v. 27, n. 17, p. 4741-4745, 1992.

KIM, S.-S.; HAN, D.-H.; CHO, S.-B. Microwave absorbing properties of sintered Ni-Zn ferrite. **IEEE Transactions on Magnetics**, v. 30, n. 6, p. 4554-4556, 1994.

KLUG, H. P.; ALEXANDER, L. E. **X-ray diffraction procedures**. Wiley New York, 1954.

KNOTT, E. F.; SHAEFFER, J. F.; TULEY, M. T. **Radar cross section, its prediction, measurement and reduction**. Artech House, Inc, 1985, p 297.

KONDO, K.; CHIBA, T.; YAMADA, S. Effect of microstructure on magnetic properties of Ni–Zn ferrites. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 254, p. 541-543, 2003.

LAX, B.; BUTTON, K. J. **Microwave Ferrites and Ferrimagnetics**. McGraw-Hill Book Company, Inc., 1962.

LEAL, E.; DE MELO COSTA, A. C. F.; DE FREITA, N. L.; DE LUCENA LIRA, H.; KIMINAMI, R. H. G. A.; GAMA, L. NiAl₂O₄ catalysts prepared by combustion reaction using glycine as fuel. **Materials Research Bulletin**, v. 46, n. 9, p. 1409-1413, 2011.

LEAL, E.; DANTAS, J.; SANTOS, P. T. A.; BICALHO, S. M. C. M.; KIMINAMI, R. H. A. G.; SILVA, M. R.; COSTA, A. C. F. M. Effect of the surface treatment on the structural, morphological, magnetic and biological properties of MFe₂O₄ iron spinels (M = Cu, Ni, Co, Mn and Fe). **Applied Surface Science**, v. 455, p. 635-645, 2018.

LEBOURGEOIS, R.; LE FUR, C.; LABEYRIE, M.; PATE, M.; GANNE, J. Permeability mechanisms in high frequency polycrystalline ferrites. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 160, p. 329-332, 1996.

LI, L.; CHEN, K.; LIU, H.; TONG, G.; QIAN, H.; HAO, B. Attractive microwave-absorbing properties of M-BaFe₁₂O₁₉ ferrite. **Journal of Alloys and Compounds**, v. 557, p. 11-17, 2013.

LIU, X.; GENG, D.; MENG, H.; SHANG, P.; ZHANG, Z. Microwave-absorption properties of ZnO-coated iron nanocapsules. **Applied Physics Letters**, v. 92, n. 17, p. 173117, 2008.

LIU, H.; LI, A.; DING, X.; YANG, F.; SUN, K. Magnetic induction heating properties of Mg_{1-x}Zn_xFe₂O₄ ferrites synthesized by coprecipitation method. **Solid State Science**, v. 93, p. 101-108, 2019.

MIKHAILOVSKY, L. K. International conference on spin-electronics and gyrovectro electrodynamics, 8, 1999, Firsanovka. **Radioabsorbing currentless (spin) media, materials and coatings**. Rússia: Moscow Power Engineering Institute, 1999. p. 7.

MIMANI, T. Instant synthesis of nanoscale spinel aluminates. **Journal of Alloys and Compounds**, v. 315, n. 1, p. 123-128, 2001.

NARUSHIMA, T.; TSUKAMOTO, H.; YONEZAWA, T. High temperature oxidation event of gelatin nanoskin-coated copper fine particles observed by in situ TEM. **AIP Advances**, v. 2, n. 4, p. 042113, 2012.

NAVROTSKY, A.; KLEPPA, O. Thermodynamics of formation of simple spinels. **Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry**, v. 30, n. 2, p. 479-498, 1968.

NOHARA, E.; MIACCI, M.; PEIXOTO, G.; MARTIN, I.; REZENDE, M. **Radar cross section reduction of dihedral and trihedral corner reflectors coated with radar absorbing materials (8-12 GHz)**. In: Microwave and Optoelectronics Conference, 2003. IMOC 2003. Proceedings of the 2003 SBMO/IEEE MTT-S International, IEEE, p.479-484, 2003.

NOHARA, E. L. **Flight Test Principles and Practice**. Continuing Professional Development in Aerospace Course (CPDA/University of Bristol/QuinetiQ, Boscombe Down Facilities – United Kingdom Ministry of Defense. Notas de aulas, novembro 2005.

NOHARA, E. L.; REZENDE, M. C. **Materiais absorvedores de radiação eletromagnética (2-40 GHz) baseados em ferrocobalto**, in: Anais do 8º Simpósio de Guerra Eletrônica - SIGE, 8. p.1-3. ITA, São José dos Campos. 2007.

O'HANDLEY, R. C. **Modern magnetic materials: principles and applications**. Wiley, 2000. ISBN 0471155667.

OH, J.-H.; OH, K.-S.; KIM, C.-G.; HONG, C.-S. Design of radar absorbing structures using glass/epoxy composite containing carbon black in X-band frequency ranges. **Composites Part B: Engineering**, v. 35, n. 1, p. 49-56, 2004.

OLMEDO, L. H., P.; JOUSSE, F. . **Microwave properties of conductive polymers. Handbook of Organic Conductive Molecules and Polymers. Conductive polymers: spectroscopy and physical properties**
John Wiley & Sons Ltd, 1977.890.

PAULO, E. G., **Síntese e caracterização de ferrita de níquel e zinco nanocristalina por combustão, para aplicação em compósito elastomérico absorvedor de micro-ondas** (2006), p. 92. Universidade Federal do Rio de Janeiro – UFRJ. Rio de Janeiro – RJ, 2006.

PARK, K.-Y.; LEE, S.-E.; KIM, C.-G.; HAN, J.-H. Fabrication and electromagnetic characteristics of electromagnetic wave absorbing sandwich structures. **Composites science and technology**, v. 66, n. 3-4, p. 576-584, 2006.

PENG, C.-H.; HWANG, C.-C.; WAN, J.; TSAI, J.-S.; CHEN, S.-Y. Microwave-absorbing characteristics for the composites of thermal-plastic polyurethane (TPU)-bonded NiZn-ferrites prepared by combustion synthesis method. **Materials Science and Engineering: B**, v. 117, n. 1, p. 27-36, 2005.

PESSOA, M. **Estudo das características magnéticas e absorvedoras das ferritas de NiZn, NiZnMn, MnZn, MnZn, NiCuZn e NiCuZnMg obtidas via método do citrato precursor**. 2009. 213. (Doutor). Química, Universidade Federal do Rio Grande do Norte - UFRN, Natal -RN.

PRAVEENA, K.; SADHANA, K.; SRINATH, S.; MURTHY, S. Effect of TiO₂ on electrical and magnetic properties of Ni_{0.35}Cu_{0.12}Zn_{0.35}Fe₂O₄ synthesized by the microwave–hydrothermal method. **Journal of Physics and Chemistry of Solids**, v. 74, n. 9, p. 1329-1335, 2013.

QIN, F.; PENG, H.-X. Ferromagnetic microwires enabled multifunctional composite materials. **Progress in Materials Science**, v. 58, n. 2, p. 183-259, 2013.

QING, X.; YUE, X.; WANG, B.; LU, Y. Facile synthesis of size-tunable, multilevel nanoporous Fe₃O₄ microspheres for application in electromagnetic wave absorption. **Journal of Alloys and Compounds**, v. 595, p. 131-137, 2014.

RAHMAN, I.; AHMED, T. A study on Cu substituted chemically processed Ni–Zn–Cu ferrites. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 290, p. 1576-1579, 2005.

RADAR Navigation and Maneuvering Boat Manual – Chapter 13 - Published by National Imagery and Mapping Agency, Bethesda, Maryland, Seventh Edition-2001.

REED, J. S. **Principles of ceramics processing**. New York: 1996.

REZENDE, M. C.; SILVA, F.; MARTIN, I. M. Materiais absorvedores de radiação eletromagnética. **Spectrum**, v. 2, p. 17-20, 2000.

RIBEIRO, U. L.; NASAR, R. S.; NASAR, M. C.; DE ARAÚJO, J. H. Liquid phase sintering of ferrite of NiCuZn with low magnetic permeability for miniaturization. **Ceramics International**, v. 44, p. 723–727, 2018.

ROBERT, C. O. **Modern Magnetic Materials - Principles and Applications**. New York: 1942. 129-130.

SANTOS, P. T. A.; ARAÚJO, P. M. A. G.; CORNEJO, D. R.; COSTA, A. C. F. M. Synthesis and characterization of hybrid Ni_{0.5}Zn_{0.5}Fe₂O₄@SiO₂/Chitosan. **Materials Research**, v. 20(3), p. 1534-1540, 2017

SATHISKUMAR, P.; THOMAS, C.; MADRAS, G. Solution combustion synthesis of nanosized copper chromite and its use as a burn rate modifier in solid propellants. **Industrial & Engineering Chemistry Research**, v. 51, n. 30, p. 10108-10116, 2012.

SEGADAES, A. M.; MORELLI, M. R.; KIMINAMI, R. G. Combustion synthesis of aluminium titanate. **Journal of the European Ceramic Society**, v. 18, n. 7, p. 771-781, 1998.

SEO, I. S.; CHIN, W. S. Characterization of electromagnetic properties of polymeric composite materials with free space method. **Composite Structures**, v. 66, n. 1-4, p. 533-542, 2004.

SILVA, V. A.; PEREIRA, J. J.; NOHARA, E. L.; REZENDE, M. C. Comportamento eletromagnético de materiais absorvedores de micro-ondas baseados em hexaferrita de Ca modificada com íons CoTi e dopada com La. **Journal of Aerospace Technology and Management**, v.1, n. 2, p. 255-263, 2009.

SLIMANI, Y.; ALMESSIERE, M. A.; SERTKOL, M.; SHIRSATH, S. E.; BAYKAL, A.; NAWAZ, M.; AKHTAR, S.; OZCELIK, B.; ERCAN, I. Structural, magnetic, optical properties and cation distribution of nanosized Ni_{0.3}Cu_{0.3}Zn_{0.4}Tm_xFe_{2-x}O₄ (0.0 ≤ X ≤ 0.10) spinel ferrites synthesized by ultrasound irradiation. **Ultrasonics Sonochemistry**, v 57, p. 203-211, 2019.

SHIN, J.; OH, J. The microwave absorbing phenomena of ferrite microwave absorbers. **IEEE Transactions on Magnetics**, v. 29, n. 6, p. 3437-3439, 1993.

SHIRSATH, S. E.; KADAM, R.; GAIKWAD, A. S.; GHASEMI, A.; MORISAKO, A. Effect of sintering temperature and the particle size on the structural and magnetic properties of nanocrystalline Li_{0.5}Fe_{2.5}O₄. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 323, n. 23, p. 3104-3108, 2011.

SIMÕES, A. N.; VIEIRA, D. A.; SILVA, M. C.; GAMA, L.; COSTA, A.; KIMINAMI, R. Obtenção de Ferritas Ni-Zn por reação de combustão e método Pechini. **Revista Eletrônica de Materiais e Processo**, v. 4, n. 2, 2009.

SING, K. S. Reporting physisorption data for gas/solid systems with special reference to the determination of surface area and porosity (Recommendations 1984). **Pure and applied chemistry**, v. 57, n. 4, p. 603-619, 1985.

SKOLNIK, M. I. **Introduction to Radar Systems**.second. Singapore: McGraw-Hill Book Co, 1981.590.

SÖZERI, H.; GENÇ, F.; ÜNAL, B.; BAYKAL, A.; AKTAŞ, B. Magnetic, electrical and microwave properties of Mn–Co substituted $\text{Ni}_x\text{Zn}_{0.8-x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ nanoparticles. **Journal of Alloys and Compounds**, v. 660, p. 324-335, 2016.

STONIER, R. A. Stealth aircraft and technology from World-War-II to The Gulf. 2. history and background. **Sampe Journal**, v. 27, n. 4, p. 9-17, 1991.

SU, H.; LUO, Q.; JING, Y.; LI, Y.; ZHANG, H.; TANG, X. Effects of calcination temperature and flux doping on the microstructure and magnetic properties of low-temperature-fired NiCuZn ferrites. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 469, p. 419–427, 2019.

SUJATHA, C.; REDDY, K. V.; BABU, K. S.; REDDY, A. R.; RAO, K. Effect of sintering temperature on electromagnetic properties of NiCuZn ferrite. **Ceramics International**, v. 39, n. 3, p. 3077-3086, 2013.

SUTRADHAR, S.; MUKHOPADHYAY, K.; PATI, S.; DAS, S.; DAS, D.; CHAKRABARTI, P. K. Modulated magnetic property, enhanced microwave absorption and Mössbauer spectroscopy of $\text{Ni}_{0.40}\text{Zn}_{0.40}\text{Cu}_{0.20}\text{Fe}_2\text{O}_4$ nanoparticles embedded in carbon nanotubes. **Journal of Alloys and Compounds**, v. 576, p. 126-133, 2013.

TAN, K. S.; HINBERG, I.; WADHWANI, J. **Electromagnetic interference in medical devices**. Medical Electronics Manufacturing <<http://www.medicaldevicelink.com>>.

TEBER, A.; UNVER, I.; KAVAS, H.; AKTAS, B.; BANSAL, R. Knitted radar absorbing materials (RAM) based on nickel–cobalt magnetic materials. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 406, p. 228-232, 2016.

THOMAS, J. J.; SHINDE, A.; KRISHNA, P.; KALARIKKAL, N. Cation distribution and micro level magnetic alignments in the nanosized nickel zinc ferrite. **Journal of Alloys and Compounds**, v. 546, p. 77-83, 2013.

THOMASSIN, J.-M.; JEROME, C.; PARDOEN, T.; BAILLY, C.; HUYNEN, I.; DETREMBLEUR, C. Polymer/carbon based composites as electromagnetic interference (EMI) shielding materials. **Materials Science and Engineering: R: Reports**, v. 74, n. 7, p. 211-232, 2013.

VAN GROENOU, A. B.; BONGERS, P.; STUYTS, A. Magnetism, microstructure and crystal chemistry of spinel ferrites. **Materials Science and Engineering**, v. 3, n. 6, p. 317-392, 1969.

WHITE, D. R. J. **A handbook series on electromagnetic interference and compatibility.** Don White Consultants, 1981. Disponível em: <<https://books.google.com.br/books?id=luxSAAAAMAAJ>>.

WU, K. H.; TING, T. H.; LI, M. C.; HO, W. D. Sol-gel synthesis of self-combustion of NiZn ferrite doped SiO₂ using different fuels. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 298, n. 1, p. 25-32, 2006.

YAN, S.; LIU, W.; CHEN, Z.; NIE, Y.; WANG, X.; FENG, Z. Preparation and characterization of ferrite with Co substituted NiCuZn sheets application for 13.56 MHz radio frequency identification communication. **Journal of applied physics**, v. 115, n. 17, p. 17A529, 2014.

ZHANG, L.; YU, X.; HU, H.; LI, Y.; WU, M.; WANG, Z.; LI, G.; SUN, Z.; CHEN, C. Facile synthesis of iron oxides/reduced graphene oxide composites: application for electromagnetic wave absorption at high temperature. **Scientific reports**, v. 5, p. 9298, 2015.

ZHU, J.; OUYANG, C.; XIAO, S.; GAO, Y. Microwave sintering versus conventional sintering of NiCuZn ferrites. Part I: Densification evolution. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 407, p. 308-313, 2016.

APÊNDICE I

Para a composição Ni_{0,5}Zn_{0,5}Fe₂O₄:

$$0,5 [\text{Ni}(\text{NO}_3)_2] + 0,5 [\text{Zn}(\text{NO}_3)_2] + 2 [\text{Fe}(\text{NO}_3)_3] + n(\text{CO}(\text{NH})_2) = 0$$

$$0,5 (-10) + 0,5 (-10) + 2 (-15) + n 6 = 0$$

$$- 5 - 5 - 30 = - n6$$

$$- 40 = - n6$$

$$n = 6, 667 \text{ moles de ureia}$$

Para a composição Ni_{0,4}Zn_{0,4}Cu_{0,2}Fe₂O₄:

$$0,4 [\text{Ni}(\text{NO}_3)_2] + 0,4 [\text{Zn}(\text{NO}_3)_2] + 0,2 [\text{Cu}(\text{NO}_3)_2] + 2 [\text{Fe}(\text{NO}_3)_3] + n(\text{CO}(\text{NH})_2) = 0$$

$$0,4 (-10) + 0,4 (-10) + 0,2 (-10) + 2 (-15) + n 6 = 0$$

$$- 4 - 4 - 2 - 30 = - n6$$

$$- 40 = - n6$$

$$n = 6, 667 \text{ moles de ureia}$$

Para a composição Ni_{0,35}Zn_{0,35}Cu_{0,3}Fe₂O₄:

$$0,35 [\text{Ni}(\text{NO}_3)_2] + 0,35 [\text{Zn}(\text{NO}_3)_2] + 0,3 [\text{Cu}(\text{NO}_3)_2] + 2 [\text{Fe}(\text{NO}_3)_3] + n(\text{CO}(\text{NH})_2) = 0$$

$$0,35 (-10) + 0,35 (-10) + 0,3 (-10) + 2 (-15) + n 6 = 0$$

$$- 3,5 - 3,5 - 3 - 30 = - n6$$

$$- 40 = - n6$$

$$n = 6, 667 \text{ moles de ureia}$$

Para estabelecer a quantidade estequiométrica (em gramas) da ureia e dos reagentes, é preciso multiplicar a quantidade (em mol), dos reagentes, por suas respectivas massas moleculares.

- **Composição Ni_{0,5}Zn_{0,5}Fe₂O₄**

$$m = n \times MA$$

$$m \text{ Ureia} = 6, 667 \text{ mol} \times 60,06 \text{ g/mol} = 400,42 \text{ g}$$

$$m \text{ Nitrato de níquel} = 0,5 \text{ mol} \times MA = 0,5 \text{ mol} \times 290,81 \text{ g/mol} = 145,405 \text{ g}$$

$$m \text{ Nitrato de zinco} = 0,5 \text{ mol} \times MA = 0,5 \text{ mol} \times 297,47 \text{ g/mol} = 148,735 \text{ g}$$

$$m \text{ Nitrato de ferro} = 2 \text{ mol} \times MA = 2 \text{ mol} \times 404,00 \text{ g/mol} = 808,00 \text{ g}$$

$$\text{Total de reagentes (nitratos + ureia)} = 1502,56 \text{ g}$$

- **Composição $\text{Ni}_{0,4}\text{Zn}_{0,4}\text{Cu}_{0,2}\text{Fe}_2\text{O}_4$**

$$m = n \times \text{MA}$$

$$m \text{ Ureia} = 6,667 \text{ mol} \times 60,06 \text{ g/mol} = 400,42 \text{ g}$$

$$m \text{ Nitrato de níquel} = 0,4 \text{ mol} \times \text{MA} = 0,4 \text{ mol} \times 290,81 \text{ g/mol} = 116,32 \text{ g}$$

$$m \text{ Nitrato de zinco} = 0,4 \text{ mol} \times \text{MA} = 0,4 \text{ mol} \times 297,47 \text{ g/mol} = 118,988 \text{ g}$$

$$m \text{ Nitrato cobre} = 0,2 \text{ mol} \times \text{MA} = 0,2 \text{ mol} \times 241,60 \text{ g/mol} = 48,32 \text{ g}$$

$$m \text{ Nitrato de ferro} = 2 \text{ mol} \times \text{MA} = 2 \text{ mol} \times 404,00 \text{ g/mol} = 808,00 \text{ g}$$

$$\text{Total de reagentes (nitratos + ureia)} = 1492,048 \text{ g}$$

- **Composição $\text{Ni}_{0,35}\text{Zn}_{0,35}\text{Cu}_{0,3}\text{Fe}_2\text{O}_4$**

$$m = n \times \text{MA}$$

$$m \text{ Ureia} = 6,667 \text{ mol} \times 60,06 \text{ g/mol} = 400,42 \text{ g}$$

$$m \text{ Nitrato de níquel} = 0,35 \text{ mol} \times \text{MA} = 0,35 \text{ mol} \times 290,81 \text{ g/mol} = 101,783 \text{ g}$$

$$m \text{ Nitrato de zinco} = 0,35 \text{ mol} \times \text{MA} = 0,35 \text{ mol} \times 297,47 \text{ g/mol} = 104,114 \text{ g}$$

$$m \text{ Nitrato cobre} = 0,3 \text{ mol} \times \text{MA} = 0,3 \text{ mol} \times 241,60 \text{ g/mol} = 72,48 \text{ g}$$

$$m \text{ Nitrato de ferro} = 2 \text{ mol} \times \text{MA} = 2 \text{ mol} \times 404,00 \text{ g/mol} = 808,00 \text{ g}$$

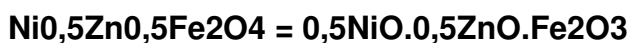
$$\text{Total de reagentes (nitratos + ureia)} = 1486,797 \text{ g}$$

APÊNDICE II

Cálculos EDX:

Cálculo teórico referente aos percentuais de óxidos existentes na nanoferrita $\text{Ni}_{0,5}\text{Zn}_{0,5}\text{Fe}_2\text{O}_4$.

1. Com base nos dados das massas molares de cada componente químico presente, calculou-se a massa molecular total da ferrita $\text{Ni}_{0,5}\text{Zn}_{0,5}\text{Fe}_2\text{O}_4$, como abaixo:



$$0,5\text{NiO} = 0,5 \text{ mol} \times (58,71 + 16,00) \text{ g/mol} = 37,355 \text{ g}$$

$$0,5\text{ZnO} = 0,5 \text{ mol} \times (65,37 + 16,00) \text{ g/mol} = 40,685 \text{ g}$$

$$\text{Fe}_2\text{O}_3 = 1 \text{ mol} \times (2 \times 55,85) + (3 \times 16,00) \text{ g/mol} = 159,700 \text{ g}$$

$$\text{Massa total} = 237,74 \text{ g}$$

2. Calculou-se o valor percentual de cada óxido que compõem a amostra NZ pela seguinte equação:

$$\%XO = \frac{MX}{MT} \cdot 100$$

Em que:

XO composto óxido

MX massa do composto óxido

MT massa total da composição

Obtendo-se os seguintes resultados:

- ✓ NiO = 15,712 %
- ✓ ZnO = 17,113 %
- ✓ Fe₂O₃ = 67,174 %

Cálculo teórico referente aos percentuais de óxidos existentes na nanoferrita $\text{Ni}_{0,4}\text{Zn}_{0,4}\text{Cu}_{0,2}\text{Fe}_2\text{O}_4$.

3. Com base nos dados das massas molares de cada componente químico presente, calculou-se a massa molecular total da ferrita $\text{Ni}_{0,4}\text{Zn}_{0,4}\text{Cu}_{0,2}\text{Fe}_2\text{O}_4$, como abaixo:



$$0,4\text{NiO} = 0,4 \text{ mol} \times (58,71+16,00) \text{ g/mol} = 29,884 \text{ g}$$

$$0,4\text{ZnO} = 0,4 \text{ mol} \times (65,37+16,00) \text{ g/mol} = 32,548 \text{ g}$$

$$0,2\text{CuO} = 0,2 \text{ mol} \times (63,54+16) \text{ g/mol} = 15,908 \text{ g}$$

$$\text{Fe}_2\text{O}_3 = 1 \text{ mol} \times (2 \times 55,85) + (3 \times 16,00) \text{ g/mol} = 159,700 \text{ g}$$

$$\text{Massa total} = 238,04 \text{ g}$$

4. Calculou-se o valor percentual de cada óxido que compõem a amostra NZC2 pela seguinte equação:

$$\%XO = \frac{MX}{MT} \cdot 100$$

Em que:

XO: composto óxido

MX: massa do composto óxido

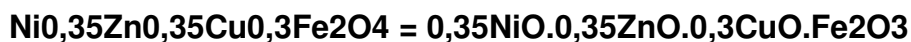
MT: massa total da composição

Obtendo-se os seguintes resultados:

- ✓ NiO = 12,554 %
- ✓ ZnO = 13,673 %
- ✓ CuO = 6,684 %
- ✓ Fe₂O₃ = 67,089 %

Cálculo teórico referente aos percentuais de óxidos existentes na nanoferrita $\text{Ni}_{0,35}\text{Zn}_{0,35}\text{Cu}_{0,3}\text{Fe}_2\text{O}_4$.

5. Com base nos dados das massas molares de cada componente químico presente, calculou-se a massa molecular total da ferrita $\text{Ni}_{0,35}\text{Zn}_{0,35}\text{Cu}_{0,3}\text{Fe}_2\text{O}_4$, como abaixo:



$$0,35\text{NiO} = 0,35 \text{ mol} \times (58,71+16,00) \text{ g/mol} = 26,148 \text{ g}$$

$$0,35\text{ZnO} = 0,35 \text{ mol} \times (65,37+16,00) \text{ g/mol} = 28,479 \text{ g}$$

$$0,3\text{CuO} = 0,3 \text{ mol} \times (63,54+16) \text{ g/mol} = 23,862 \text{ g}$$

$$\text{Fe}_2\text{O}_3 = 1 \text{ mol} \times (2 \times 55,85) + (3 \times 16,00) \text{ g/mol} = 159,700 \text{ g}$$

$$\text{Massa total} = 238,189 \text{ g}$$

6. Calculou-se o valor percentual de cada óxido que compõem a amostra NZC3 pela seguinte equação:

$$\%XO = \frac{MX}{MT} \cdot 100$$

Em que:

XO: composto óxido

MX: massa do composto óxido

MT: massa total da composição

Obtendo-se os seguintes resultados:

- ✓ NiO = 10,978 %
- ✓ ZnO = 11,956 %
- ✓ CuO = 10,019 %
- ✓ Fe₂O₃ = 67,047 %