# SÍNTESE POR REAÇÃO DE COMBUSTÃO E CARACTERIZAÇÃO ESTRUTURAL DE FERRITAS Ni-Zn DOPADAS COM COBRE

DANTAS, J.<sup>1</sup>; SANTOS, J. R. D.<sup>1</sup>; CUNHA, R. B. L.<sup>1</sup>; FEITOSA, C. A.<sup>1</sup>; COSTA, A. C. F. M.<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Laboratório de Síntese de Materiais Cerâmicos (LabSMac) – Unidade Acadêmica de Engenharia de Materiais – Universidade Federal de Campina Grande/UFCG

Av. Aprígio Veloso - 882, Bodocongó, 58109-970, Campina Grande - PB, Brasil.

joeldadantas@yahoo.com.br, jakelineedm@gmail.com

### RESUMO

O presente estudo objetiva avaliar o efeito da dopagem com íons  $Cu^{2+}$ em concentração de 0,0; 0,1; 0,2; 0,3 e 0,4 mol na síntese e estrutura da ferrita Ni-Zn. As amostras foram sintetizadas pelo método de reação de combustão e caracterizadas por aferição da temperatura em função do tempo de reação, difração de raios-X (DRX) e espectroscopia na região do infravermelho com transformada de Fourier (FTIR). A temperatura e tempo de combustão foram de 646, 900, 989, 975 e 735°C e 210, 175, 220, 210 e 110 segundos para as amostras dopadas com 0,0; 0,1; 0,2; 0,3 e 0,4 mol de cobre, respectivamente. Os resultados de DRX revelam que em todas as concentrações de cobre avaliadas, houve apenas a formação da fase do espinélio inverso ferrita Ni-Zn e os espectros de FTIR apresentam bandas de absorção abaixo de 1000 cm<sup>-1</sup>, as quais são características do espinélio tipo AB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>.

Palavras-chave: espinélio inverso, ferritas Ni-Zn, reação de combustão.

# INTRODUÇÃO

As cerâmicas magnéticas ternárias, conhecidas como ferritas do tipo espinélio, estrutura AB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, tem atraído considerável atenção nos últimos anos em diversas aplicações tecnológicas como absorvedores de radiação eletromagnética para freqüências na faixa das micro-ondas<sup>(1)</sup>, ferrofluidos<sup>(2)</sup>, dispositivos magnéticos moles<sup>(3)</sup>, catalisadores para decomposição de CO<sub>2</sub><sup>(4)</sup>, pigmentos marrons<sup>(5)</sup>, microindutores<sup>(6)</sup>, separação de DNA<sup>(7)</sup>, entre outras. Esta vasta aplicação destes materiais tem levado a busca de novas tecnologias, ou aperfeiçoamento das tecnologias já existentes, visando a busca de nanomateriais com propriedades refinadas para cada aplicação específica.

Assim, o interesse no desenvolvimento de nanopós ou materiais nanoestruturados tem despertado atenção de vários pesquisadores no estudo da preparação de cerâmicas magnéticas por diferentes métodos de síntese química, visando sintetizar nanopartículas, com baixo grau de aglomeração e estreita faixa de distribuição de tamanho. O método cerâmico usual de preparação das cerâmicas ferro-espinélios leva a preparação de partículas agregadas e com baixa homogeneidade, que conseqüentemente apresentam baixas áreas superficiais. Deste modo, o uso de técnicas de síntese química via úmida, têm sido bastante relatada para preparação destes materiais. Dentre as técnicas mais citadas, temos: coprecipitação<sup>(8)</sup>, sol-gel<sup>(9)</sup>, síntese hidrotérmica<sup>(10)</sup>, reação de combustão<sup>(11, 12)</sup>, citrato precursor<sup>(13)</sup>.

Em particular, a síntese por reação de combustão vem apresentando grande potencial na preparação de cerâmicas magnéticas do tipo ferroespinélios, visto que possibilita a obtenção de produtos com elevada área específica, homogeneidade química, pureza. Além do mais é uma técnica simples (uma vez que não necessita de múltiplas etapas), de custo relativamente baixo e normalmente leva a produtos com estrutura e composição desejadas, devido à elevada homogeneização favorecida pela solubilidade dos sais em água. Sendo desta forma, uma técnica favorável e promissora para obtenção de nanopós, com possibilidade de reprodução em escala piloto<sup>(14)</sup>.

Portanto, com base neste contexto, este estudo objetivou sintetizar ferritas Ni-Zn dopadas com 0,0; 0,1; 0,2; 0,3 e 0,4 mol de Cu<sup>2+</sup> e avaliar o efeito da dopagem na temperatura e tempo da reação de combustão e na estrutura dos nanopós sintetizados.

## MATERIAIS E MÉTODOS

Os reagentes utilizados na síntese foram: nitrato de níquel hexahidratado  $(Ni(NO_3)_2.6H_2O)$ , nitrato de zinco hexahidratado  $(Zn(NO_3)_2.6H_2O)$ , nitrato de ferro nonohidratado  $(Fe(NO_3)_3.9H_2O)$ , nitrato de cobre II  $(Cu(NO_3)_2.3H_2O)$  e a uréia  $(CO(NH_2)_2)$ . Todos com pureza entre 98-99%. A síntese das amostras de ferritas Ni-Zn dopada com Cu<sup>2+</sup> por reação de combustão, inicialmente

envolveu então uma mistura destes sais de íons metálicos, como reagentes oxidantes (nitratos), e um combustível (uréia), como agente redutor. A proporção da mistura inicial de cada reagente foi calculada de acordo com as valências dos elementos reativos estabelecida pela estequiometria de acordo com os conceitos da química dos propelentes e explosivos<sup>(15)</sup>. Todas as reações de combustão em recipiente, com capacidade para produzir 15g por batelada. Todas as reações foram realizadas em triplicata, de modo que para cada concentração de cobre avaliada foi feita três reações em dias e horários diferentes e foram designadas por reações R1, R2 e R3, visando avaliar a reprodutibilidade da síntese. Os produtos (amostras) obtidos da combustão foram desaglomerados com auxílio de almofariz e pistilo e passados em peneira 325 mesh (44µm).

Em todas as reações foram realizadas aferição da temperatura da reação de combustão utilizando-se um pirômetro de infravermelho (Raytek, modelo RAYR31 ± 2°C), com precisão para medir temperatura no intervalo de 250°C a 1700°C, registrando automaticamente a máxima temperatura alcançada durante a combustão. O tempo de combustão foi medido por um cronômetro digital (marca Technos). A temperatura de reação foi medida em um intervalo de tempo de 5 e 5 segundos entre cada medição de forma *online*. O início da medição da temperatura da reação foi efetuado após a dissolução total dos reagentes e o final da medição da temperatura de reação foi medido 5 segundos após atingir a temperatura máxima da chama de combustão.

As amostras foram caracterizadas por difração de raios-X (DRX) e espectroscopia na região do infravermelho com transformada de Fourier (FTIR). Para a determinação das fases presentes, do grau de cristalização e do tamanho de cristalito das amostras dos pós preparados por reação de combustão foram determinados utilizando um difratômetro de raios-X SHIMADZU (modelo XRD 6000, radiação CuK). O tamanho médio de cristalito foi calculado a partir da linha de alargamento de raios-X (d<sub>311</sub>) por meio da deconvolução da linha de difração secundária do silício policristalino (utilizado como padrão), utilizando-se a equação de Scherrer<sup>(16)</sup>. A cristalinidade foi determinada a partir da razão entre a área integrada do pico referente à fase cristalina e a área referente à fração amorfa.

Para obtenção dos espectros de FTIR, utilizou-se pastilhas de KBr a 0,1% (em massa) da amostra, e os dados foram coletados em um espectrômetro Shimadzu Spectrum BX–Perkin Elmer, na feixa de 4000 e 400 cm<sup>-1</sup>, com resolução de 4 cm<sup>-1</sup> e 20 varreduras.

### RESULTADOS

A Figura 1 apresenta a variação da temperatura em função do tempo da reação de combustão para ferrita  $Ni_{0,4-x}Cu_xZn_{0,5}Fe_2O_4$  com concentração de  $Cu^{2+}$  variando de  $0 \le x \le 0,4$ . Para cada concentração de cobre, foram realizadas três reações.

#### 56º Congresso Brasileiro de Cerâmica 1º Congresso Latino-Americano de Cerâmica IX Brazilian Symposium on Glass and Related Materials 03 a 06 de junho de 2012, Curitiba, PR, Brasil

Por intermédio da Figura 1(a), observou-se um comportamento diferente para as três reações do sistema sem dopagem de cobre. Para reação R1, nos primeiros 5,4 s verifica-se que a temperatura se manteve estável até 170 s, depois houve um crescimento exponencial da temperatura até atingir a temperatura máxima de 1163°C, caindo bruscamente nos intervalos de 190 a 205 s. Para a reação R2, observa-se que nos primeiros 5,4 s de reação, a temperatura se manteve também estável até 130 s, depois houve um crescimento exponencial da temperatura máxima de 670°C, caindo bruscamente nos intervalos de 150 a 155 s. Para a reação R3, notou-se nos primeiros 5,4 s que a temperatura se manteve estável até 161 s, depois houve um crescimento exponencial da temperatura se manteve estável até 161 s, depois houve um crescimento exponencial da temperatura da temperatura até atingir a temperatura máxima de 612°C, caindo bruscamente nos intervalos de 150 a 155 s. Para a reação R3, notou-se nos primeiros 5,4 s que a temperatura se manteve estável até 161 s, depois houve um crescimento exponencial da temperatura até atingir a temperatura até atingir a temperatura máxima de 612°C, caindo bruscamente nos intervalos de 176 a 190 s.



**Figura 1** - Variação da temperatura da reação em função do tempo de reação para ferrita Ni<sub>0,4-</sub>  $_x$ Cu<sub>x</sub>Zn<sub>0,5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>: (a) x = 0,0; (b) x = 0,1; (c) x = 0,2; (d) x = 0,3; (e) x = 0,4 mol de Cu<sup>2+</sup>.

Para o sistema dopado com concentração de 0,1 mol de Cu<sup>2+</sup> (Figura 1(b)), verifica-se que para a reação R1 nos primeiros 10 a 17 s ocorreu uma queda na temperatura, a qual aumentou consideravelmente até 50 s, depois aumentou bruscamente para uma temperatura de 704°C, e em seguida caiu rapidamente e se manteve constante até uma temperatura de 346°C, a partir daí voltou a subir bruscamente atingindo uma temperatura máxima de 793°C. Para as reações R2 e R3, respectivamente, nos primeiros 5 a 125 s e 5 a 135 s, a temperatura se manteve constante, e depois a temperatura aumenta bruscamente atingindo a temperatura máxima de 976 e 836°C.

Por meio da Figura 1(c), sistema com concentração de 0,2 mol de Cu, observou-se para reação R1, várias oscilações na temperatura desde os primeiros 5 s até 170 s. Para reação R2 e R3, observou-se poucas oscilações na temperatura no intervalo entre 5 e 125 s e entre 5 e 135 s, para as reações

R2 e R3, respectivamente. Posteriormente, para as três reações a temperatura aumenta bruscamente, até atingir temperatura máxima de 787, 961 e 976°C, para as reações R1, R2 e R3, respectivamente.

A Figura 1(d), para o sistema com concentração de 0,3 mol de Cu, observou-se para reação R1, que a temperatura apresentou várias oscilações no intervalo de tempo entre 5 até 165 s. Para as reações R2 e R3, a temperatura pouco variou no intervalo de tempo de 5 até 145 s e 5 até 165 s, respectivamente. Posteriormente, para as três reações, a temperatura aumentou bruscamente atingindo temperaturas máximas de 781°C, 934°C e 1001°C, para as reações R1, R2 e R3, respectivamente.

Na Figura 1(e), para o sistema com concentração de 0,4 mol de Cu<sup>2+</sup>, observou-se para a reação R1, que nos primeiros 5 até 80 s de reação, ocorreu pouca variação da temperatura. Para as reações R2 e R3, verificou-se que a temperatura se mantive constantes no intervalo de tempo entre 5 até 70 s. Posteriormente, para as três reações (R1, R2 e R3), observou-se que a temperatura aumenta bruscamente até atingir temperatura máxima de 704, 866 e 597°C, respectivamente.

No decorrer das reações foram observadas as principais características da síntese por reação de combustão das amostras de ferritas Ni-Zn dopadas com Cu<sup>2+</sup>, tais como: cor, tempo de reação, tempo de chama, temperatura de chama e de ignição. Estas características estão apresentadas na Tabela 1 e foram parâmetros importantes que influenciaram nas características estruturais e morfológicas das amostras. Observou-se que as amostras para x = 0,0 e x = 0,3 mol de Cu<sup>2+</sup>, apresentaram as maiores temperaturas da chama de combustão, 1129 e 945°C, respectivamente, comparadas com as demais concentrações de Cu<sup>2+</sup> avaliadas. Isto foi comprovado pela intensidade e coloração das chamas ocorridas durante as sínteses. Observou-se ainda que a dopagem com Cu<sup>2+</sup> favoreceu a diminuição da temperatura de chama máxima e aumentou a temperatura de ignição.

Amostras	x = 0,0	x = 0,1	x = 0,2	x = 0,3	x = 0,4
Cor da chama	Amarela	Verde	Verde	Verde	Verde
Tempo de chama (s)	249	46	223	106	46
Temperatura de chama máxima (°C)	1129	942	623	945	751
Tempo total de reação (s)	485	460	623	310	495
Temperatura de ignição (°C)	236	414	400	416	449

**Tabela 1** – Cor, tempo, temperatura máxima e de ignição para as reações da ferrita Ni-Zn dopada com cobre.

Segundo Vanim<sup>(17)</sup> (1999), a cor da chama depende basicamente do elemento químico em maior abundância do material que está sendo queimado. Por outro lado, a temperatura depende da constituição química e da quantidade de material que está sendo queimado, não apresentando uma relação direta com a cor da chama. Porém, sabe-se que uma chama de cor violeta é mais quente, enquanto que uma chama de cor vermelha será menos quente.

Cunha<sup>(18)</sup> (2004), ao estudar o sistema Ni<sub>0,5-x</sub>Cu<sub>x</sub>Zn<sub>0,5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> com 0≤ x ≤0,5 sintetizado pelo método de combustão usando um cadinho de porcelana e fonte de aquecimento uma placa cerâmica de 480°C, observou que durante o processo de síntese das ferritas houve uma mudança de coloração da chama de combustão, de amarelo (no sistema sem cobre), para verde (nos sistemas com dopagem de cobre). Essa coloração verde é uma característica do elemento químico cobre, pois uma vez que o átomo metálico é excitado exibe essa cor. Tais observações foram semelhantes neste trabalho, pois a amostra com x = 0,0 (sem dopagem) apresentou uma cor de chama amarela, enquanto que as composições com adições de cobre de 0,1; 0,2; 0,3 e 0,4 mol apresentaram a coloração verde.

Na Figura 2(a), (b), (c), (d) e (e) encontram-se apresentados os difratogramas de raios-X das amostras de ferritas Ni-Zn dopadas com Cu<sup>2+</sup>, em quantidades molares de 0,0; 0,1; 0,2; 0,3 e 0,4 obtidas por reação de combustão.



**Figura 2**- Difratogramas de raios-X das amostras: (a) x = 0,0; (b) x = 0,1; (c) x = 0,2; (d) x = 0,3*e* (e) x = 0,4 mol de Cu<sup>2+</sup>.

Para todas as concentrações avaliadas de Cu<sup>2+</sup>, verificou-se a formação da fase do espinélio inverso Ni<sub>0,5</sub>Zn<sub>0,5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, identificada mediante as fichas cristalográficas JCPDF 52-0278 e JCPDF 08-0234. Todos os difratogramas exibiram picos com elevada intensidade, caracterizando as amostras como cristalinas, e picos com largura basal larga, indicando assim, a natureza nanométrica das partículas dos pós.

Isto está em conformidade com a literatura<sup>(19)</sup>, que ao investigar a influencia do combustível na síntese por reação de combustão de ferritas Ni-Zn, usando como combustíveis: uréia, glicina e uma mistura de uréia e glicina, observou nos difratogramas de raios-X a presença da fase majoritária em todas as composições e um maior alargamento dos picos apresentados pelas amostras que utilizaram uréia como combustível, o que indicou a característica mais fina destas amostras.

Os resultados da cristalinidade das amostras, que variaram de 71 a 74% (exceto para amostra com x = 0,1 mol de Cu<sup>2+</sup>, que apresentou cristalinidade de 58%) e o tamanho de cristalito para a reflexão de primeira ordem (intesidade 100) correspondendo a família de planos {311} do espinélio, que foram de 26 a 35 nm (conforme aumentava-se o incremento de Cu<sup>2+</sup>), confirmaram a obtenção em escala nano e consequentemente a eficácia da reação de combustão para obtenção de NiZnFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> de forma simples e rápida. Condição igual foi verificada por Ghasemi et al.,<sup>(20)</sup> (2011), quando sintetizaram via micela reversa a mesma ferrita Ni-Zn dopada com cobre. Os autores observaram que o aumento no teor de cobre, o tamanho das partículas aumentaram consideravelmente, de 3 a 7 nm para concentração de cobre de x = 0,0 e de 30 a 40 nm para concentração de cobre de x = 0,5 mol. Os autores justificaram o aumento em função da adição do dopante, que por sua vez possui raio iônico maior, o qual em substituição aos íons de Ni<sup>2+</sup> (com raio iônico menor), gerou a formação de defeitos na rede, influenciando no tamanho do cristalito.

No estudo de Simões et al., <sup>(21)</sup> (2009), onde sintetizou-se ferritas de Ni-Zn por reação de combustão, utilizando um cadinho de sílica vítrea em forno de micro-ondas, os autores reportaram cristalinidade de 63% para as amostras estudadas. Araújo (2011), estudando essa mesma ferrita Ni-Zn, obtida por reação de combustão, porém utilizando um cadinho de inox e posteriormente calcinada, reportaram amostras com cristalinidade de 83%. Logo, o processo de reação de combustão, tanto para esse trabalho como para os trabalhos dos autores reportados, se mostrou uma excelente técnica para obtenção de ferritas (tipo espinélio) cristalinas em escala nano, independentemente do recipiente utilizado para a síntese.

Na Figura 3(a), (b), (c), (d) *e* (e) encontram-se os espectros vibracionais na região do infravermelho, para faixa de 4000 a 400 cm<sup>-1</sup>, das amostras de Ni<sub>0,4-x</sub>Cu<sub>x</sub>Zn<sub>0,5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> com concentração de Cu<sup>2+</sup> entre  $0 \le x \le 0,4$ , obtidas por reação de combustão. De acordo com estes resultados observou-se em todos os espectros a presença de duas bandas de absorção abaixo de 1000 cm<sup>-1</sup>, as quais são características do espinélio  $AB_2O_4$ . Estas bandas são caracterizadas por vibrações de íons na rede do cristal. A banda de absorção v<sub>1</sub> localizada na faixa de aproximadamente 815 cm<sup>-1</sup> foi atribuída às vibrações dos sítios tetraédricos e a banda v<sub>2</sub> localizada na faixa de aproximadamente 490 cm<sup>-1</sup>

Tarte et al.,<sup>(22)</sup> (1990) *e* Allen et al.,<sup>(23)</sup> (1995) identificaram à banda  $v_1$  como sendo vibrações intrínsecas dos sítios tetraédricos e a banda  $v_2$  a vibrações dos sítios octaédricos. Velmurugan et al.,<sup>(24)</sup> (2010), estudando ferritas de Ni-Zn obtidas pelo método de coprecipitação e utilizando espectros de FTIR nas amostras, observaram a presença de bandas características da ferrita do espinélio inverso abaixo de 1000 cm<sup>-1</sup>. Então, estas bandas de baixa energia (em torno de 400 a 1000 cm<sup>-1</sup>), conforme a literatura<sup>(25)</sup> estão relacionadas às vibrações de estiramento e às vibrações de flexão de coordenação tetraédrica e octaédrica.



**Figura 3 –** Espectro na região do infravermelho para ferrita $Ni_{0,4-x}Cu_xZn_{0,5}Fe_2O_4$ : onde (a) x = 0,0; (b) x = 0,1; (c) x = 0,2; (d) x = 0,3 e (e) x = 0,4 mol de Cu.

Também foi observado bandas na faixa de aproximadamente 3660 cm<sup>-1</sup>, característico de ligações O–H–O, essa presença de água se deu devido o KBr ter sido utilizado no processo de preparação das amostras e por ser ele higroscópico, possuindo desta forma grande facilidade de absorver umidade<sup>(26)</sup>. Observou-se também que além das bandas de O–H–O, há presença de bandas de O–H em torno de 1500 cm<sup>-1</sup>, correspondentes às vibrações de estiramento do grupo O–H, que se referem à água livre e/ou fisicamente adsorvida e aos grupos hidroxilas, comprovando assim a presença da água. As

bandas de O–H apresentaram-se bem evidenciadas em todas as amostras, com exceção da amostra x = 0,2, onde se apresentou mais discretamente.

De acordo com Freitas et al.,<sup>(27)</sup> 2006, quando estudaram a síntese do  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> por reação de combustão, estas bandas podem ser atribuídas à hidratação da composição antes e/ou durante a análise. Desta forma, essas bandas que foram evidenciadas neste estudo, estão em conformidade com a literatura, que relata bandas vibracionais em torno de 1500 e 3600 cm<sup>-1</sup> correspondentes, respectivamente, à deformação das moléculas de água interlamelares e às vibrações dos grupos hidroxilas  $\gamma$ (O-H) livres ou ligados a hidrogênio, resultante da água fisicamente adsorvida<sup>(26, 25)</sup>.

## CONCLUSÃO

Com base no conjunto dos resultados obtidos, a síntese pelo método da reação de combustão da Ni<sub>0,4-x</sub>Cu<sub>x</sub>Zn<sub>0,5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> com  $0 \le x \le 0,4$ , permitiu a obtenção das amostras com boa cristalinidade e com tamanho de cristalito em escala nanométrica, de forma simples, rápida e com boa reprodutibilidade. As temperaturas e tempos de reação possibilitaram a formação da fase única da ferrita, com tamanho de cristalito entre 26 - 35 nm. Em suma, o aumento da concentração de Cu<sup>2+</sup> favoreceu a diminuição da temperatura de chama máxima e aumentou a temperatura de ignição durante as reações. A dopagem com Cu<sup>2+</sup> também causou aumento no tamanho do cristalito. Os espectros de difração de raios-X e infravermelho confirmaram a formação da estrutura do espinélio inverso AB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. Para todas as concentrações de cobre avaliadas, os íons de cobre substituíram os íons de níquel na rede do espinélio.

### AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem ao CNPq, INAMI-CNPq, pelo suporte financeiro.

# REFERÊNCIAS

(1) MESHRAM, M.R.; NAWAL, K.; AGRAWAL, B.; SINHA, P.S.M. Characterization of M-type barium hexagonal ferrite-based wide band microwave absorber. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, 2009.

(2) REINL, H.M.; PELLER, M.; HAGMANN, M.; TURNER, P.; ISSELS, R.D.; REISER, M. Ferrite-enhanced MRI monitoring in hyperthermia. **Magnetic Resonance Imaging**, v. 23, p. 1017–1020, 2005.

(3) COSTA, A.C.F.M.; DINIZ, A.P.; SILVA, V.J.; KIMINAMI, R.H.G.A.; CORNEJO, D.R.; GAMA, A.M.; REZENDE, M.C.; GAMA, L. Influence of calcination temperature on the morphology and magnetic properties of Ni–Zn ferrite applied as an electromagnetic energy absorber. **Journal of Alloys and Compounds**, v. 483, p. 563–565, 2009a.

(4) MA, L., CHEN, L. and CHEN, S. "Study on the characteristics and activity of Ni–Cu–Zn ferrite for decomposition of CO<sub>2</sub>", **Materials Chemistry and Physics**, v. 114, p. 692–696, 2009.

(5) COSTA, A.C.F.M.; LEITE, A.M.D.; FERREIRA, H.S.; KIMINAMI R.H.G.A.; CAVAC, S.; GAMA L. Brown pigment of the nanopowder spinel ferrite prepared by combustion reaction. **Journal of the European Ceramic Society**, v. 28, p. 2033–2037, 2008a.

(6) REDDY N.R.; RAMANA M.V.; RAJITHA G.; SIVAKUMAR K.V.; MURTHY V.R.K. Stress insensitive NiCuZn ferrite compositions for microinductor applications. **Current Applied Physics**, v. 9, p. 317–323, 2009.

(7) NAM, A. J.-H.; JOO Y.-H.; LEE J.-H.; CHANG J.H.; JEONG HO CHO; CHUN M. P.; KIM B.I. Preparation of NiZn-ferrite nanofibers by electrospinning for DNA separation. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 321, p. 1389–1392. 2009.

(8) LI, Q.; WANG, Y.; CHANG, C. Study of Cu, Co, Mn and La doped NiZn ferrite nanorods synthesized by the coprecipitation method. **Journal of Alloys and Compounds**, v. 505, p. 523–526, 2010.

(9) AL-NAKOUA, M.A.; EL-NAAS, M.H.; ABU-JDAYIL, B. Characterization and testing of sol–gel catalysts prepared as thin layers in a plate reactor. **Fuel Processing Technology**, June 2011.

(10) LUIS, A.M.; NEVES, M.C.; MENDONCA, M.H.; MONTEIRO, O.C. Influence of calcination parameters on the  $TiO_2$  photocatalytic properties. **Materials Chemistry and Physics**, v. 125, p. 20–25, 2011.

(11) COSTA, A.C.F.M.; SILVA, V.J.; CORNEJO, D.R.; MORELLI, M.R.; KIMINAMI, R. H.G.A.; GAMA, L. Magnetic and structural properties of NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ferrite nanopowder doped with  $Zn^{2+}$ . **Journal of Magnetism and Magnetic Materials,** v. 320, p. 370–372, 2008b.

(12) VASANTHI, V.; SHANMUGAVANI, A.; SANJEEVIRAJA, C.; KALAI SELVAN, R. Microwave assisted combustion synthesis of CdFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>: Magnetic and electrical properties. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, 324 (2012) 2100–2107.

(13) JADHAV, P.A.; DEVAN, R.S.; KOLEKAR, Y.D.; CHOUGULE, B.K. Structural, electrical and magnetic characterizations of Ni–Cu–Zn ferrite synthesized by citrate precursor method. Journal of Physics and Chemistry of Solids, v. 70, p. 396–400, 2009.

(14) COSTA, A.C.F.M.; KIMINAMI, R.H.G.A.; MORELLI, M.R. Combustion synthesis processing of nanoceramics. In: Handbook of nanoceramics and their based nanodevices (Synthesis and Processing). Ed. American Scientific Publishers, v. 1, Chapter 14, p. 375-392, 2009b.

(15) JAIN, S.R.; ADIGA, K.C.; VERNEKER, P. A new approach to thermo chemical calculations of condensed fuel-oxidizer mixture. **Combustion and Flame**, v. 40, p. 71-79, 1981.

(16) KLUNG, H.; ALEXANDER, L. X-ray diffraction procedures, New York: Wiley, 1962.

(17) VANIM, J.A. Alquimistas e Químicos: o Passado, o Presente e o Futuro. 12<sup>a</sup> Ed. São Paulo, Editora Moderna, 1999.

(18) CUNHA, F.A.P. Síntese, caracterização morfológica e magnética de ferritas Ni-Zn dopadas com cobre por reação de combustão, Dissertação de Mestrado em Engenharia Química, Centro de Ciências e Tecnologia, Universidade federal da Paraíba/UFPB, João Pessoa - PB, 2004. 87f.

(19) BARROS, T.S. Influência do Combustível na síntese por reação de combustão de ferritas Ni-Zn. Dissertação (Mestrado em Engenharia de Materiais), Centro de Ciências e Tecnologia, Universidade Federal de Campina Grande/UFCG, Campina Grande - PB. 2008. 97f.

(20) GHASEMI, A.; GHASEMI, E.; PAIMOZD, E.: Influence of copper cations on the magnetic properties of NiCuZn ferrite nanoparticles. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, Vol. 323 (2011), p. 1541–1545.

(21) SIMÕES, A.N.; VIEIRA, D.A.; SILVA, M.C.; GAMA, L.; COSTA, A.C.F.M.; KIMINAMI, R.H.G.A. Obtenção de Ferritas Ni-Zn por reação de combustão e método Pechini. **Revista Eletrônica de Materiais e Processos**, v.4.2, p. 26-31, ISSN 1809-8797, 2009.

(22) TARTE, P. et al. Vibrational spectroscopy and solid state chemistry, *Solid State Ionics* 42: 177, 1990.

(23) ALLEN, G.C. and PAUL, M. Chemical characterization of transition metal spinel-type oxides by infrared spectroscopy, *Appli. Spect*, 49: 451, 1995.

(24) VELMURUGAN, K.; VENKATACHALAPATHYV, S.K.; SENDHILNATHAN S. Synthesis of Nickel Zinc Iron Nanoparticles by Coprecipitation Technique. *Materials Research*. 2010; 13(3): 299-303.

(25) STASZAK, W.; ZAWADZKI, M.; OKAL, J. Solvothermal synthesis and characterization of nanosized zinc aluminate spinel used in iso-butane combustion. **Journal of Alloys and Compounds**, v. 492, p. 500–507, 2010.

(26) ZAWADZKI, M.; STASZAK, W.; LÓPEZ-SUÁREZ, F.E.; ILLÁN-GÓMEZ, M.J.; BUENO-LÓPEZ, A. Preparation, characterisation and catalytic performance for soot oxidation of copper-containing ZnAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> spinels. **Applied Catalysis A: General**, vol. 371, p. 92–98, 2009.

(27) FREITAS, N.L.; FAGURY-NETO, E.; LIRA, H.L.; KIMINAMI, R.H.G.A.; COSTA, A.C.F.M. Combustion synthesis of  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> powders. **Materials Science Forum**, v. 530-531, p. 631-636, 2006.

# COMBUSTION SYNTHESIS BY REACTION AND CHARACTERIZATION OF STRUCTURAL Ni-Zn FERRITE DOPED WITH COPPER

### ABSTRACT

The present stud yaims to evaluate the effect of doping with  $Cu^{2+}$  ions concentrations of 0.0, 0.1, 0.2, 0.3 and 0.4 mol in the synthesis and structure of Ni-Zn ferrite. Samples were synthesized by the method of the combustion reaction and characterized by measuring the temperature as a function of reaction time, X-ray diffraction (XRD) and infrared spectroscopy in Fourier transform (FTIR). The combustion temperature and time were 646, 900, 989, 975 and 735°C and 210, 175, 220, 210 and 110 seconds for the sample doped with 0.0, 0.1, 0.2, 0.3 and 0.4 mol of copper, respectively. XRD results show that all concentrations of copper evaluated, there was only atraining phase inverse spinel ferrite and Ni-Zn FTIR spectra show absorption bands below  $1000 \text{ cm}^{-1}$ , which are characteristics of the spinel type AB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>.

Keywords: inverse spinel, Ni-Zn ferrites, combustion reaction.