

MICROESTRUTURA, PROPRIEDADES MAGNÉTICAS E DIELETRICAS DA FERRITA DE COBRE E NIÓBIO

Vander Alkmin dos Santos Ribeiro ¹
Claudiney de Sales Pereira Mendonça ²
Valesca Donizeti de Oliveira ²
Manoel Ribeiro da Silva ²
Adhimar Flávio Oliveira ²
Rero Marques Rubinger ²
Sandra Aparecida Martins Silva ²

Resumo

Para a obtenção de uma ferrita de cobre e nióbio com a estrutura do espinélio foram produzidas amostras pelo processo de reação do estado sólido com estequiometria $Nb_xCu_{1-x}Fe_2O_4$ ($x = 0,0; 0,10$ e $0,20$) e sinterizadas a $1000^\circ C$ por 8 h e subsequente a caracterização da sua microestrutura e a determinação das suas propriedades magnéticas. As caracterizações estrutural, microestrutural e magnética foram realizadas utilizando as técnicas de difração de raios x, microscopia eletrônica de varredura, magnetômetro de amostra vibrante e análise termomagnética. Os resultados mostram que a amostra com $x = 0,00$ é formada pela fase com estrutura de espinélio cúbico e tetragonal. A amostras com estequiometria $x = 0,10$ e $0,20$ são formadas exclusivamente pela fase com estrutura de espinélio cúbico e a fase Nb_2FeO_6 com estrutura ortorrômbica. As curvas de histerese mostram características de materiais magnéticos moles e sua magnetização de saturação aumentou com a concentração de nióbio. As medidas de permissividade elétrica e caracterização por impedância das amostras, realizados na faixa de 1 Hz a 10 MHz, sugerem que as propriedades elétricas das amostras sofrem maior influência dos contornos de grão.

Palavras-chave: Ferrita de cobre e nióbio; Microestrutura; Propriedades magnéticas; Propriedades dielétricas.

INVESTIGATION OF THE MICROSTRUCTURE AND THE MAGNETIC PROPERTIES OF THE OF COPPER AND NIOBIUM FERRITE

Abstract

To obtain a copper and niobium ferrite with the structure of spinel samples were produced by solid state reaction process stoichiometry $Nb_xCu_{1-x}Fe_2O_4$ ($x = 0.0, 0.10$ and 0.20) and sintered at $1000^\circ C$ for 8 h and subsequent characterization of its microstructure and determine their magnetic properties. The structural characterizations, microstructural and magnetic were performed using the techniques of X-ray diffraction, scanning electron microscopy (SEM), vibrating sample magnetometer of and magnetic thermal analysis. The results showed that the sample with $x = 0.00$ was formed by the phase cubic and tetragonal spinel structure. The stoichiometry samples with $x = 0.10$ and 0.20 were formed exclusively by the phase cubic spinel structure and Nb_2FeO_6 phase with orthorhombic structure. The hysteresis curves showed soft magnetic material characteristics and its saturation magnetization increased with the concentration of niobium. As electrical permittivity measurements and impedance characterization of the samples, the range of 1 Hz to 10 MHz, suggest that the electrical characteristics of the samples suffer greater influence of the grain boundary.

Keywords: Copper and niobium ferrites; Microstructure; Magnetic properties; Dielectric properties.

¹Centro Universitário de Itajubá – FEPI, Itajubá, MG, Brasil. E-mail: vanderalkmin@gmail.com

²Universidade Federal de Itajubá – UNIFEI, Itajubá, MG, Brasil.



I INTRODUÇÃO

A ferrita dopada com nióbio apresenta diversas vantagens na sua aplicação em dispositivos tecnológicos, assim como em outros componentes cerâmicos [1]. Estudos mostram que pequenas quantidades de Nb_2O_5 (0,01-0,08% em peso) em núcleos de transformadores de Mn-Zn reduzem a perda por histerese, pois a sua adição modifica as propriedades magnéticas alterando sua microestrutura e quando são utilizadas em núcleos para filtros de linha melhoram a permeabilidade magnética em frequência superior a 500 kHz. A dopagem com nióbio também altera as propriedades elétricas melhorando a permissividade elétrica no titanato de bismuto [1].

As ferritas do tipo espinélio possuem fórmula química MFe_2O_4 , onde M é um ion divalente. Os oxigênios formam uma estrutura cúbica simples compacta com 64 sítios de coordenação tetraédrica e 32 sítios de coordenação octaédrica, no qual 8 sítios de coordenação tetraédrica e 16 sítios de coordenação octaédrica são ocupados por cátions [2]. Um cátion divalente tende a ocupar os sítios tetraédricos para a formação de uma estrutura de espinélio normal, se estes cátions ocuparem os sítios octaédricos formam uma estrutura de espinélio inversa [2]. Quando estas ferritas são dopadas com cobre ocorre uma distorção na rede cristalina, ou seja, a célula unitária do espinélio sofre um discreto crescimento em uma das arestas, devido à inclusão de certa quantidade de cobre. O crescimento em uma das arestas muda a simetria do espinélio cúbico para tetragonal, sendo este efeito denominado efeito Jahn-Teller [3,4]. Neste caso a mudança da microestrutura ocorre porque o Cu^{2+} tem a preferência em ocupar os sítios tetraédricos ou octaédricos, enquanto que o Fe^{3+} passa a ocupar os sítios tetraédricos [3,4].

As propriedades magnéticas destas ferritas são dependentes da composição química, do tamanho de grão e da estrutura cristalina. A elevada permeabilidade magnética inicial pode ser alcançada apenas em amostras com grande tamanho de grão e com a porosidade residual localizada nos contornos de grão. Trabalhos mostram que o tamanho de grão é um dos parâmetros que mais afetam as propriedades magnéticas das ferritas, como permeabilidade magnética, correntes de Foucault, perda por histerese [4]. As propriedades dielétricas também são dependentes da microestrutura sendo composta de duas camadas. A primeira camada é composta por grãos de materiais considerados bons condutores que são separados por uma segunda camada fina (contornos de grão) relativamente pobre em substâncias condutoras. Esses contornos de grão podem ser formados durante o processo de sinterização devido à redução ou oxidação superficial dos cristalitos nos materiais porosos como um resultado de seu contato direto com o ar ambiente do forno. O contorno de grão é mais efetivo nas contribuições dielétricas em baixa frequência enquanto que os grãos apresentam maior efetividade nessas contribuições em altas frequências [5].

Rao e Kim [6] investigaram a ferrita de zinco e níquel dopada com oxido de nióbio com estequiometria $Ni_{0,65}Zn_{0,35}Fe_2O_4 + x Nb_2O_5$ em que x varia de 0,0 a 1,5% em peso, com passo de 0,3% em peso, preparado pela técnica de cerâmica convencional e sinterizados a 1250°C durante 4 h em ar atmosfera. Resultados revelam que a adição de óxido de nióbio na microestrutura promoveu um aumento do tamanho de grão de 4 μm para 13,2 μm .

Sun et al. [7] investigaram o crescimento de grão e as propriedades magnéticas da ferrita de NiZn dopado com Nb_2O_5 preparados por um método de reação em estado sólido. Os padrões de raios x mostraram uma única fase com a estrutura de espinélio quando a concentração de Nb_2O_5 foi inferior a 1,00% em peso. Em concentrações acima de 1,00% em peso de Nb_2O_5 , além da fase de espinélio observou-se a fase Nb_2FeO_6 com estrutura ortorrômbica. A microestrutura revelou que não houve crescimento do grão com concentração abaixo de 0,85% em peso. Entretanto, com a dopagem acima de 0,85% em peso de Nb_2O_5 induziu a formação de grandes grãos com poros na microestrutura. A permeabilidade inicial aumentou até a concentração de 0,40% em peso e houve a diminuição com concentração até 1,00% em peso. Observou-se também que a magnetização de saturação diminuiu com o aumento da concentração de Nb_2O_5 .

Neste manuscrito apresenta-se a obtenção de uma ferrita de cobre e nióbio com a estrutura do espinélio, a caracterização da sua microestrutura e a determinação das suas propriedades magnéticas. Além disso, realizou-se o estudo da permissividade elétrica e caracterização por impedância das amostras na faixa de frequência de 1 Hz a 10 MHz.

2 MATERIAIS E MÉTODOS

Amostras com estequiometria $Nb_xCu_{1-x}Fe_2O_4$ ($x = 0,00; 0,10; 0,20$) foram preparadas pelo processo de reação do estado sólido utilizando CuO , Fe_2O_3 e NbO com pureza mínima de 99,9% em peso. Inicialmente, os óxidos foram pesados, levando em consideração a estequiometria x. Em seguida, os óxidos foram misturados e moídos em uma almofariz de ágata por cerca de 1 h. As amostras foram compactadas em uma prensa uniaxial e sinterizadas a 1000°C por 8 h em atmosfera ambiente.

A caracterização estrutural foi realizada pelas técnicas de difração de raios x utilizando-se um difratômetro da marca Panalytical modelo Xpert Pro MPD com radiação CoK_{α} , ângulo de varredura de 15° a 80°, passo de 0,02° s^{-1} e tempo de contagem de 0,5 s por ponto. As fases foram identificadas através do programa X'Pert High Score dos arquivos JCPDS da base de dados.

Os parâmetros magnéticos foram determinados através das curvas de magnetização obtidas através de um magnetômetro de amostra vibrante comum (VSM) da marca Lakeshore, 7404, campo aplicado até 14 kG. Os resultados

do momento magnético apresentam uma incerteza menor que 1%.

A temperatura de Curie foi identificada aplicando-se um campo magnético sobre a amostra sinterizada em um aparelho Analisador Termogravimétrico com um imã acoplado, marca Shimadzu, TGA-50, entre a temperatura ambiente e 1000°C com uma taxa de aquecimento de 10°C/min. A temperatura de curie foi calculada através da análise das curvas de magnetização em função da temperatura através do efeito Hopkinson com uma incerteza inferior a 1%.

As medidas de permissividade elétrica e caracterização por impedância das amostras foram realizados na faixa de frequência de 1 Hz a 10 MHz através de um equipamento da marca Novo Control Technologies, modelo Apha A high Performance Frequency Analyser.

As micrografias foram obtidas utilizando-se um equipamento da marca Zeiss, modelo EVO MA15. A determinação do tamanho médio de grão foi feita utilizando-se o programa de processamento digital "Image J" realizada em micrografia conforme a norma ASTM E 1382-97 [8]. A partir das imagens, fez-se a medida do diâmetro de Feret, excluindo os grãos dispostos na borda da imagem. As imagens foram analisadas atingindo a contagem média de 1000 grãos por amostra e a incerteza foi calculada através do limite de erro estatístico [9].

Os valores da densidade a verde das amostras não sinterizadas foram obtidos pelo método massa por volume e a densidade aparente das amostras sinterizadas foram determinadas pelo método de imersão utilizando o princípio de Arquimedes (norma ABNT-NBR 6620) [10-13].

3 RESULTADOS

Na Figura 1 são apresentados os difratogramas de raios x do conjunto de amostras. Pode-se observar que a amostra sem adição de nióbio ($x = 0,00$) é formada exclusivamente pela fase ferrita com estrutura de espinélio cúbico e pela fase ferrita com estrutura de espinélio tetragonal. As amostras com estequiometria $x = 0,10$ e $x = 0,20$ são formadas exclusivamente pela fase ferrita com estrutura de espinélio cúbico e aparecimento da fase Nb_2FeO_6 com estrutura ortorrômbica.

A Figura 2a mostra as curvas de magnetização em função do campo aplicado a temperatura ambiente das amostras. A Figura 2a apresenta as curvas de magnetização em função do campo aplicado a temperatura ambiente das amostras sinterizadas a 1000°C por 8 horas com estequiometria contendo $x = 0,00$ a $x = 0,20$. As ferritas de cobre dopada com nióbio possuem características de um material magnético mole, e apresentam um comportamento que foi atribuído aos valores menores que 1000 G do campo coercivo (H_c) e área interna estreita do ciclo de histerese magnéticas não permanentes, que se magnetizam e desmagnetizam com grande facilidade e comportamento que foi atribuído aos

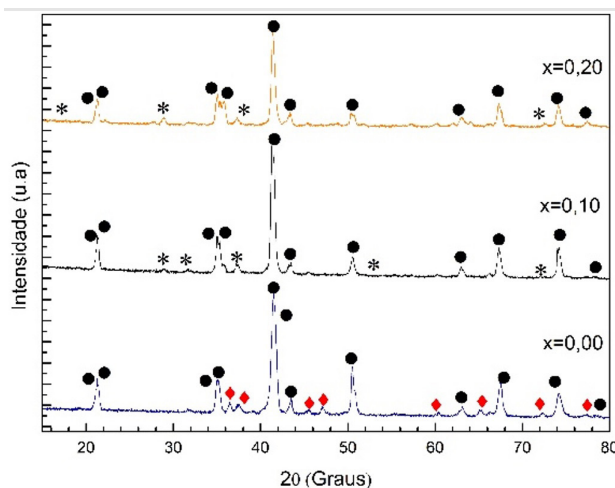


Figura 1. Difratogramas de raios x das amostras sinterizadas de $Nb_xCu_{(1-x)}Fe_2O_4$ (•) Espinélio Cúbico (♦) Espinélio tetragonal (*) Nb_2FeO_6 .

valores menores que 1000 G do campo coercivo (H_c) e área interna estreita do ciclo de histerese [12-14].

A Figura 2b mostra as curvas de magnetização em função de temperatura. A medida que as amostras são aquecidas na presença de um campo magnético verifica-se em uma faixa de temperatura uma perda de magnetização acentuada, denominado de efeito Hopkinson. O efeito Hopkinson caracteriza-se por um pico na curva magnetização em função da temperatura próximo a temperatura de Curie baseado no movimento das paredes de domínio. Durante o aquecimento, a mobilidade das paredes de domínio aumenta muito na proximidade da temperatura de Curie aumentando a componente da magnetização na direção do campo externo.

A Tabela 1 mostra os resultados da magnetização de saturação (M_s), campo coercivo (H_c) e magnetização remanente (M_r) e temperatura de Curie (T_c). A magnetização de saturação aumentou de 39,81 emu/g para a amostra isenta de nióbio ($x = 0,00$) para 43,72 emu/g para a amostra com estequiometria contendo $x = 0,20$. O aumento da magnetização de saturação pode ocorrer devido à facilidade dos domínios e para ocorrer esse deslocamento é necessário que a energia do campo externo aplicado seja maior que a energia de fixação da parede. Assim, quanto maior o tamanho de grão, menor será a área de contorno de grão e mais fácil será à interação de momento atômico na direção do campo magnético aplicado; conseqüentemente, maior será a magnetização [10]. A magnetização remanente decresceu de 2,24 emu/g para a amostra isenta de nióbio ($x = 0,00$) para 1,70 emu/g para a amostra com estequiometria $x = 0,20$. Observa-se também que o campo coercivo diminuiu de 34,00 G na amostra isenta de Nióbio ($x = 0,00$) para 30,33 G na amostra com estequiometria contendo $x = 0,20$. A diminuição do campo coercivo ocorreu devido a dependência do campo coercivo com o tamanho do grão, ou seja, quanto maior o tamanho do grão, menor é o campo coercivo [15, 16]. Observou-se

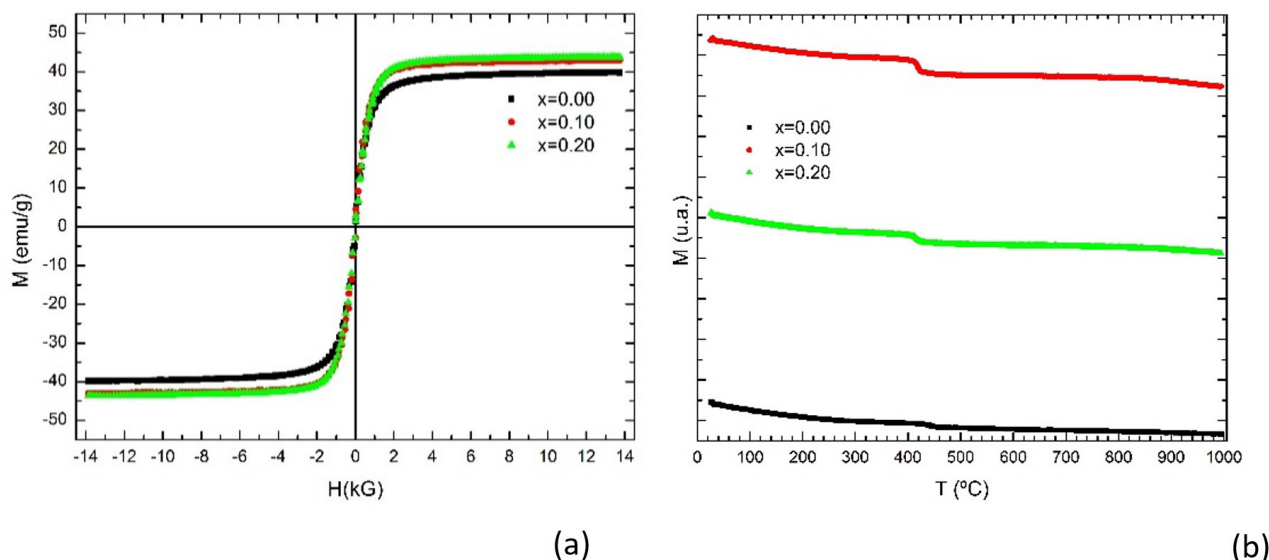


Figura 2. (a) Ciclo de histerese M-H; (b) Magnetização dependente da temperatura de diferentes amostras.

Tabela I. Valores da magnetização de saturação (M_s), coercividade (H_c), Magnetização Remanente (M_r) e temperatura de Curie (T_c)

Amostras	M_s (emu/g)	H_c (G)	M_r (emu/g)	T_c (°C)
0,00	39,81	34,00	2,24	419
0,10	43,07	31,30	2,20	418
0,20	43,72	30,33	1,70	417

magnetização de saturação (M_s), campo coercivo (H_c) e magnetização remanente (M_r) e temperatura de Curie (T_c).

que não ocorreram mudanças significativas nos valores da temperatura de Curie.

Para separar as contribuições do contorno de grão e do grão das amostras de ferrita $Nb_xCu_{1-x}Fe_2O_4$ foi construído o gráfico de impedância entre 1 Hz e 10 MHz à temperatura ambiente fornecendo os componentes reais (Z') e imaginários (Z''). Este gráfico geralmente resulta na presença de dois semicírculos separados, onde um representa o efeito dos grãos em altas frequências, enquanto o outro representa o efeito dos contornos de grão em baixa frequências. A Figura 3 mostra que todas as formas das curvas apresentadas sugerem que as propriedades elétricas das amostras sofrem maior influência dos contornos de grão, caracterizado pela presença de um único semicírculo.

A Figura 4 mostra a variação da permissividade elétrica em função da frequência à temperatura ambiente e a variação da tangente de perda dielétrica $\tan\delta$ com a frequência, que é a razão entre a energia dissipada e a energia armazenada em cada ciclo. Na Figura 4a observa-se a partir da figura que o valor da permissividade elétrica diminui com o aumento da frequência e atinge um valor constante a alta frequência, comportamento típico das ferritas [17]. Um portador de carga em um dielétrico leva um tempo finito para alinhar seus dipolos paralelamente na direção de um campo elétrico alternado. Quando a frequência aumenta, em um determinado ponto os portadores de

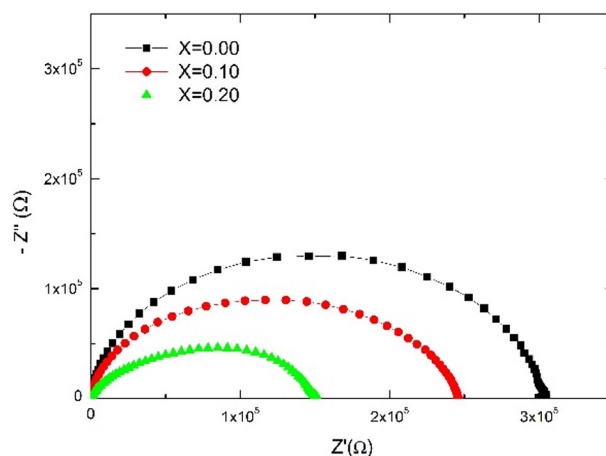


Figura 3. Gráfico de nyquist para ferritas $Nb_xCu_{1-x}Fe_2O_4$ à temperatura ambiente.

carga não podem manter-se com o campo alternado e conseqüentemente diminui a permissividade elétrica com um aumento na frequência [18].

A diminuição da permissividade elétrica com aumento da frequência também pode ser explicada com base na teoria de Koop, que pressupõe que as ferritas são formadas por grãos condutores separadas por finas camadas resistivas, os contornos de grãos. O alto valor da permissividade a baixa frequência está relacionado com o contorno de grão e a alta frequência, a permissividade é resultado dos grãos que têm um pequeno valor de permissividade [19,20]. Este mesmo comportamento da permissividade elétrica em função da frequência é observada no caso dos sistemas de ferrita de $ZnFe_2O_4$, $MnFe_2O_4$ [21], $ZnCu_{1-x}Fe_2O_4$ e $MnCu_{1-x}Fe_2O_4$ [22].

Na Figura 4b observa-se para $x = 0$ a $x = 0,20$ com o aumento da frequência, o valor de $\tan(\delta)$ diminui linearmente o que é comportamento normal das ferritas [17].

A diminuição da tangente da perda dielétrica com o aumento de frequência possui uma forte relação entre o comportamento dielétrico das ferritas com seu mecanismo de condução. Observa-se também para $x = 0$ a $x = 0,20$ com o aumento da frequência não mostram nenhum pico na faixa de frequência. A ausência do pico ocorre devido à pequena contribuição da permissividade dielétrica para mostrar qualquer variação observável do fator de perda com frequência. Além disso, a diminuição de $\tan \delta$ com o crescimento da frequência ocorre devido ao fato que o salto dos portadores de carga não poder seguir as mudanças do campo elétrico aplicado para um certo limite de frequência.

A influência da concentração de nióbio sobre as características físicas, densidade a verde (Dv), densidade aparente (Da) e porosidade aparente (Pa) e de suas respectivas densidades relativas são apresentadas na Tabela 2. Os valores da densidade a verde aumentaram de $1,87 \text{ g/cm}^3$ para a amostra isenta de nióbio ($x = 0,00$) para $3,45 \text{ g/cm}^3$ para a amostra com estequiometria contendo $x = 0,20$. O resultado (Dv/Dt) das amostras contendo $x = 0,10$ e $x = 0,20$ foram superiores a 50%, o que mostra que houve uma boa densificação, exceto para a amostra isenta de nióbio. Após observou-se que a densidade aparente (Da) diminuiu de $4,85 \text{ g/cm}^3$ para a amostra isenta de nióbio ($x = 0,00$) para $3,88 \text{ g/cm}^3$ para a amostra com estequiometria contendo $x = 0,20$.

Observou-se também que a relação entre os valores da densidade aparente com a densidade teórica (Da/Dt) diminuiu de 89,48% para a amostra isenta de nióbio ($x = 0,00$) para 71,58% para a amostra com estequiometria contendo $x = 0,20$ e seus resultados mostram que houve uma boa densificação durante a sinterização. Além disso, houve um aumento da porosidade na amostra isenta de nióbio ($x = 0,00$) de 1,60% para 7,79% na amostra com estequiometria contendo $x = 0,20$.

A Figura 5 mostra as micrografias das amostras $\text{Nb}_x\text{Cu}_{(1-x)}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0, 0,1, 0,2$) com ampliação de 5000X. Pode-se notar a tendência de formação de cristais finos para formar mini ou macro aglomerados com formas, tamanhos e a presença de poros irregulares. Observa-se que as amostras são formadas por partículas de tamanhos variados e com morfologia esférica. Observa-se também que a adição de nióbio levou a um aumento no tamanho médio das partículas. Nas micrografias obtidas podemos observar o efeito da adição do nióbio na ferrita de cobre através da análise da superfície de fratura mostrando que houve um aumento da porosidade, isto muito provavelmente ocorreu por causa do aumento da porcentagem desse dopante.

A Tabela 3 mostra a variação do tamanho médio de grão para a amostra isenta de nióbio ($x = 0,00$) a estequiometria contendo $x = 0,20$ sinterizadas a 1000°C por 8 h. O tamanho médio dos grãos aumentou de $(0,61 \pm 0,08) \mu\text{m}$ para a amostra isenta de nióbio ($x = 0,00$) para $(0,87 \pm 0,22) \mu\text{m}$

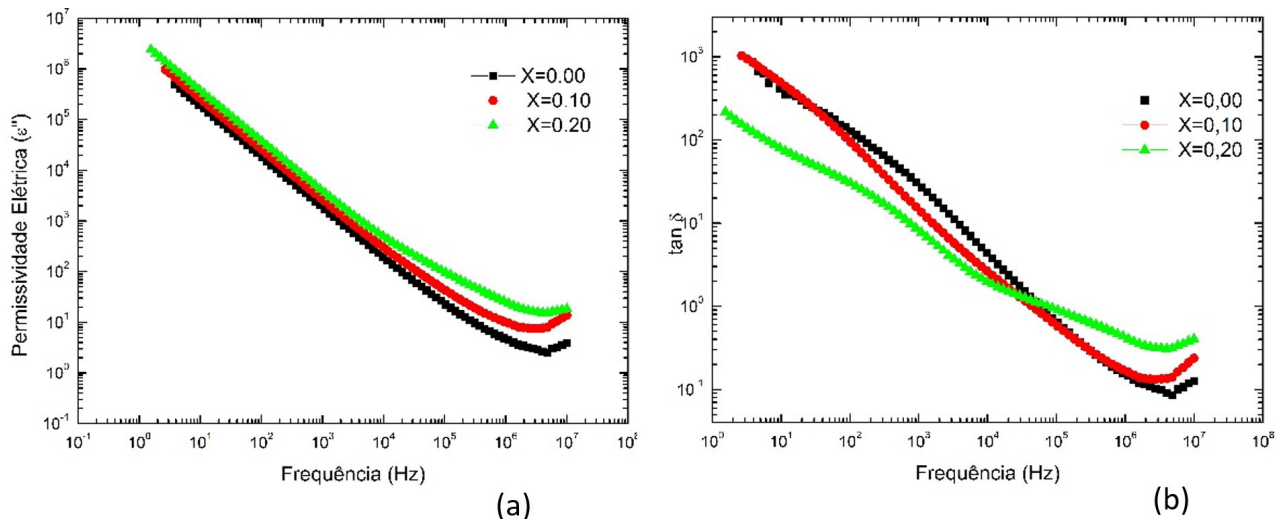


Figura 4. (a) Variação da permissividade elétrica em função da frequência à temperatura ambiente; (b) Variação da tangente de perda dielétrica ($\tan \delta$) com a frequência.

Tabela 2. Características físicas das amostras sinterizadas a 1000°C por 8 h

AMOSTRAS	AMOSTRAS NÃO SINTERIZADAS		AMOSTRAS SINTERIZADAS			
	X	Dv (g/cm^3)	Dv/Dt (%)	Da (g/cm^3)	Da/Dt (%)	Pa (%)
	0,00	1,87	34,61	4,85	89,48	1,60
	0,10	3,33	61,53	4,80	88,56	1,95
	0,20	3,45	63,70	3,88	71,58	7,79

Densidade teórica (Dt): $5,42 \text{ g/cm}^3$ -JCPDS 01-077-0010; Densidade a verde (Dv).

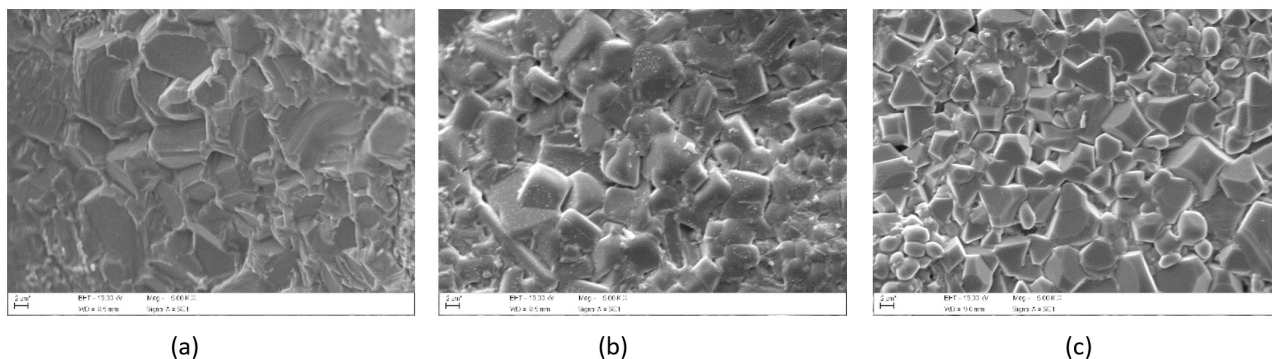


Figura 5. Micrografia das amostras sinterizadas. (a) $x = 0,00$; (b) $x = 0,10$; e (c) $x = 0,20$.

Tabela 3. Tamanho médio de grão para as amostras com estequiometria contendo $x = 0,00$ a $x = 0,20$

AMOSTRAS X	TAMANHO DE GRÃO (m)
0,00	$0,61 \pm 0,08$
0,10	$0,74 \pm 0,22$
0,20	$0,87 \pm 0,22$

Tamanho De Grão (μm).

para a amostra com estequiometria $x = 0,20$, o que explicaria o aumento da magnetização de saturação e a diminuição do campo coercivo das amostras [3]. Observa-se que houve aumento do tamanho médio do grão e aumento da porosidade simultaneamente, o que explicaria que a sinterização desse sistema é conhecida por apresentar crescimento de grãos e poros sem densificação [23].

4 CONCLUSÕES

Os resultados mostraram que as amostras com $x = 0,00$ são formadas pela fase ferrita com estrutura de espinélio cúbico e também pela fase ferrita com estrutura de espinélio tetragonal. As amostras com estequiometria

$x = 0,10$ e $x = 0,20$ são formadas exclusivamente pela fase ferrita com estrutura de espinélio cúbico e aparecimento da fase Nb_2FeO_6 com estrutura ortorrômbica. O aumento da concentração de Nióbio proporcionou um aumento da porosidade e consequentemente diminuição na densidade das amostras. Os resultados (Dv/Dt) das amostras contendo $x = 0,10$ e $x = 0,20$ foram superiores a 50%, o que mostra que houve uma boa densificação, exceto para a amostra isenta de nióbio.

As curvas de histerese possuem características de um material magnético mole. Observou-se também que o aumento da concentração de nióbio aumentou o tamanho médio de grão e consequentemente aumentou a magnetização de saturação e diminuiu o campo coercivo das amostras.

As medidas em corrente alternada sugerem que as propriedades elétricas das amostras sofrem maior influência dos contornos de grão.

Agradecimentos

Os autores agradecem a CAPES, CNPq e FAPEMIG pelos apoios financeiros.

REFERÊNCIAS

- Starck HC. A grain of niobium: additives for the ferrite industry. *Ceramic Industry*. 2000 Nov. 21.
- Carta D, Casula MF, Falqui A, Loche D, Mountjoy G, Sangregorio C, et al. A structural and magnetic investigation of the inversion degree in ferrite nanocrystals MFe_2O_4 ($\text{M} = \text{Mn}, \text{Co}, \text{Ni}$). *The Journal of Physical Chemistry C*. 2009;113(20):8606-8615. <http://dx.doi.org/10.1021/jp901077c>.
- Ribeiro VS, Pereira AC, Oliveira AF, Mendonça CSP, Silva MR. Avaliação da microestrutura e das propriedades magnéticas de ferrita e cobre dopada com chumbo sinterizada com fase líquida. *Revista Matéria*. 2016;21(2):330-341. <http://dx.doi.org/10.1590/S1517-707620160002.0032>.
- Ribeiro VAS, Rodrigues G, Pereira AC, Oliveira AF, Mendonça CSP, Oliveira VD, et al. Investigação das propriedades magnéticas e microestrutura da ferrita de chumbo e cobre. *Cerâmica*. 2016;62(361):98-104. <http://dx.doi.org/10.1590/0366-69132016623611927>.
- El Hiti MA. Dielectric behaviour in Mg-Zn ferrites. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. 1999;192(2):305-313. [http://dx.doi.org/10.1016/S0304-8853\(98\)00356-4](http://dx.doi.org/10.1016/S0304-8853(98)00356-4).
- Rao BP, Kim C. Effect of Nb_2O_5 additions on the power loss of NiZn ferrites. *Journal of Materials Science*. 2007;42(20):8433-8437. <http://dx.doi.org/10.1007/s10853-007-1789-1>.

- 7 Sun K, Lan Z, Yu Z, Li L, Huang J. Grain Growth and Magnetic Properties of Nb₂O₅-Doped NiZn Ferrites. *Japanese Journal of Applied Physics*. 2008;47(10):7871-7875. <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.47.7871>.
- 8 American Society for Testing and Materials. ASTM E 1382-97: standard test methods for determining average grain size using semiautomatic and automatic image analysis. West Conshohocken: ASTM; 1997.
- 9 Marcomini RF, Souza DMPF. Caracterização microestrutural de materiais cerâmicos utilizando o programa de processamento digital de imagens "Image J". *Cerâmica*. 2011;57(341):100-105. <http://dx.doi.org/10.1590/S0366-69132011000100013>.
- 10 Torquato RA, Portela FA, Gama L, Cornejo DR, Rezende SM, Kiminami RHGA, et al. Avaliação da microestrutura e das propriedades magnéticas de ferritas Ni-Zn dopadas com cobre. *Cerâmica*. 2008;54(329):55-62. <http://dx.doi.org/10.1590/S0366-69132008000100009>.
- 11 Costa ACFM, Morelli MR, Kiminami RHGA. Microestrutura e propriedades magnéticas de ferritas Ni-Zn-Sm. *Cerâmica*. 2003;49(311):168-173. <http://dx.doi.org/10.1590/S0366-69132003000300011>.
- 12 Diniz VCS, Kiminami RHGA, Cornejo DR, Costa ACFM. Estudo microestrutural e magnético de ferritas Ni_{0,5}Zn_{0,5}Fe₂O₄ sinterizadas por energia de micro-ondas. *Revista Eletrônica de Materiais e Processos*. 2014;9(3):157-161.
- 13 Associação Brasileira de Normas Técnicas. ABNT NBR 6220:2011: materiais refratários densos conformados: determinação do volume aparente, densidade de massa aparente, porosidade aparente, absorção e densidade aparente da parte sólida. Rio de Janeiro: ABNT; 2011.
- 14 Oliveira VD, Rubinger RM, Silva MR, Oliveira AF, Rodrigues G, Ribeiro VAS. Magnetic and electrical properties of MnxCu1-xFe₂O₄ ferrite. *Materials Research*. 2016;19(4):786-790. <http://dx.doi.org/10.1590/1980-5373-MR-2015-0511>.
- 15 Mirzaee O. Influence of PbO and TiO₂ additives Influence of PbO and TiO₂ additives properties of Ni-Zn soft ferrites. *Journal of King Saud University Engineering Sciences*. 2014;26(2):152-158.
- 16 Sachelarie L, Doroftei C, Rezlescu E. Microstructure and magnetic and electrical properties of low-temperature sintering Ni-Zn, Li-Zn and Mg-Zn-Cu ferrites without and with addition of lead oxide. *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials*. 2010;12(4):864-867.
- 17 Sridhar R, Ravinder D, Kumar KV. Dielectric properties of copper substituted nickel nano-ferrites. *Journal of Engineering Research and Applications*. 2013;3(5):2021-2024.
- 18 Farooq H, Ahmad MR, Jamil Y, Hafeez A, Mahmood Z, Mahmood T. Structural and dielectric properties of manganese ferrite nanoparticles. *Journal of Basic and Applied Sciences*. 2012;8:597-601.
- 19 Rahman SA. Temperature, frequency and composition dependence of dielectric properties of Nb substituted li-ferrites. *Egyptian Journal of Solids*. 2006;29(1):22-27.
- 20 Chaudhari SC, Patil RN. Dielectric behavior and A. C. conductivity in Cu-Ti ferrites. *Advances in Applied Science Research*. 2012;6(3):3848-3854.
- 21 Iwauchi K. Dielectric properties of fine particles of Fe₃O₄ and some ferrite. *Japanese Journal of Applied Physics*. 1971;10(11):1520-1528. <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.10.1520>.
- 22 Rezlescu N, Rezlescu E. Dielectric properties of copper containing ferrites. *Physica Status Solidi*. 1974;23(2):575-582. <http://dx.doi.org/10.1002/pssa.2210230229>.
- 23 Gouvêa D. Influência das energias de superfícies e interfaces na densificação durante a sinterização: um modelo geométrico. *Cerâmica*. 2004;50(314):81-88. <http://dx.doi.org/10.1590/S0366-69132004000200003>.

Recebido em: 31 Jan. 2017

Aceito em: 4 Jul. 2017