



УКРАЇНА

(19) **UA** (11) **163671** (13) **U**

(51) МПК (2026.01)

C01G 49/00**C01G 3/00****C01G 53/00****C01G 51/00****H01F 1/04** (2006.01)

НАЦІОНАЛЬНИЙ ОРГАН
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ ВЛАСНОСТІ
ДЕРЖАВНА ОРГАНІЗАЦІЯ
"УКРАЇНСЬКИЙ НАЦІОНАЛЬНИЙ
ОФІС ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ
ВЛАСНОСТІ ТА ІННОВАЦІЙ"

(12) ОПИС ДО ПАТЕНТУ НА КОРИСНУ МОДЕЛЬ

(21) Номер заявки: u 2026 00625	(72) Винахідник(и): Мазуренко Юлія Степанівна (UA), Кайкан Лариса Степанівна (UA), Перець Юлія Сергіївна (UA), Вовченко Людмила Леонтіївна (UA), Мацуй Людмила Юріївна (UA), Яковенко Олена Сергіївна (UA)
(22) Дата подання заявки: 06.02.2026	
(24) Дата, з якої є чинними права інтелектуальної власності: 16.07.2026	
(46) Публікація відомостей про державну реєстрацію: 15.07.2026, Бюл.№ 28	(73) Володілець (володільці): КИЇВСЬКИЙ НАЦІОНАЛЬНИЙ УНІВЕРСИТЕТ ІМЕНІ ТАРАСА ШЕВЧЕНКА, вул. Володимирська, 60, м. Київ, 01033 (UA)

(54) СПОСІБ СИНТЕЗУ МАГНІТНОЇ НАНОРОЗМІРНОЇ ШПІНЕЛІ MeFe_2O_4 , де $\text{Me}=\text{Cu}, \text{Mg}, \text{Ni}, \text{Co}$ **(57) Реферат:**

Спосіб синтезу магнітної нанорозмірної шпінелі MeFe_2O_4 , де $\text{Me}=\text{Cu}, \text{Mg}, \text{Ni}, \text{Co}$ реалізується при високих температурах методом золь-гель автоспалювання з використанням хелатуючого агента та включає змішування водних розчинів нітратів двовалентного металу та нітрату заліза (III), утворення золю, висушування одержаного прекурсора та проведення реакції автоспалювання. Як хелатуючий агент та паливо використовують водний розчин поліетиленгліколю-2000 (ПЕГ-2000) у молярному співвідношенні метал:ПЕГ-2000=1:1. Реакцію автоспалювання здійснюють при температурі 350 °С, забезпечуючи утворення однорідних наночастинок шпінелі із розмірами 7-12 нм без значної агломерації з намагніченістю в діапазоні 17,8-27,8 е.м.о./г, а процес синтезу шпінельної структури здійснюють в одну стадію без додаткового прожарювання.

UA 163671 U

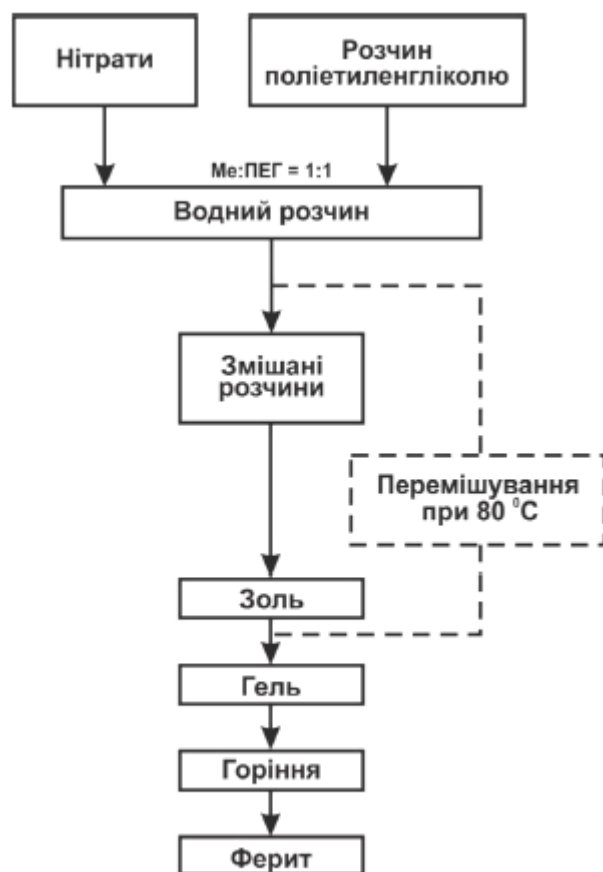


Fig. 1

Корисна модель належить до галузі нанотехнології та хімії неорганічних речовин, а саме до способів синтезу магнітних нанорозмірних матеріалів зі структурою шпінелі загальної формули MeFe_2O_4 , ($\text{Me}=\text{Cu}, \text{Mg}, \text{Ni}, \text{Co}$). Отримані наночастинки можуть використовуватися як магнітні матеріали у радіоелектроніці та мікроелектроніці, для створення поглиначів електромагнітних хвиль, у медико-біологічних цілях (гіпертермія, магнітно-резонансна діагностика, контрольована доставка лікарських засобів), а також як каталізatori фотохімічних процесів.

Відомим є спосіб отримання складних різнометальних оксидів зі структурою шпінелі [1], який включає синтез гетерометальних карбоксилатних комплексів та їх термічний розклад при 350-400 °C. Метод забезпечує одержання стехіометрично точних феритів, однак потребує використання дорогих прекурсорів (ацетатів, ацетилацетонатів), багатостадійний та малоприсадабний для масштабування.

Відомий низькотемпературний каталізатор шпінельної структури MeFe_2O_4 ($\text{Me}=\text{Co}, \text{Ni}, \text{Mn}$) [2] одержують шляхом термічного розкладу триядерних ацетатних комплексів заліза та перехідних металів. Метод дозволяє знизити температуру синтезу і одержати нанорозмірні частинки, проте характеризується складністю приготування вихідних комплексів, потребою у модифікуванні поверхнево-активними речовинами або носіями для стабілізації, що ускладнює технологію.

Відомий також спосіб одержання ферит-хромітів магнію $\text{Mg}(\text{Fe}_x\text{Cr}_{2-x})\text{O}_4$ [3] шляхом сумісного осадження гідроксидів з подальшим випалом при 1273 К. Метод забезпечує формування твердих розчинів, однак потребує високих температур термообробки, що веде до значних енерговитрат і утворення неоднорідностей складу.

Відомий спосіб одержання дисперсного фериту кобальту [4] передбачає співосадження солей Fe^{2+} і Co^{2+} та обробку суспензії полігідроксокомплексів у плазмохімічному реакторі з тліючим розрядом. Метод дозволяє отримувати високу магнітну активність, але потребує складної апаратури та значних енерговитрат, що обмежує його практичне застосування.

Найбільш близьким за технічною суттю є спосіб одержання феритових матеріалів зі структурою шпінелі з нанорозмірними кристалітами [5], який реалізується методом золь-гель автоспалювання з використанням лимонної кислоти та етиленгліколю як хелатуючих агентів. Незважаючи на зручність синтезу, спосіб має суттєві недоліки: утворюються агломеровані наночастинки, середній розмір кристалітів не опускається нижче 30-40 нм, а для феритів із нікелем можливе утворення багатофазної структури.

В основу корисної моделі поставлено задачу удосконалення способу синтезу (фіг. 1) магнітних нанорозмірних матеріалів зі структурою шпінелі (фіг. 2, 3, 4, 5) загальної формули MeFe_2O_4 ($\text{Me}=\text{Cu}, \text{Mg}, \text{Ni}, \text{Co}$), який би забезпечував одержання однорідних, хімічно стабільних, неагломерованих наночастинок із середнім розміром 7-12 нм (фіг. 6, 7, 8, 9) та високими магнітними характеристиками (фіг. 10) при знижених енерговитратах.

Поставлена задача вирішується тим, що у способі синтезу магнітної нанорозмірної шпінелі MeFe_2O_4 , де $\text{Me}=\text{Cu}, \text{Mg}, \text{Ni}, \text{Co}$, що реалізується при високих температурах методом золь-гель автоспалювання з використанням хелатуючого агента та включає змішування водних розчинів нітратів двовалентного металу та нітрату заліза (III), утворення золю, висушування одержаного прекурсора та проведення реакції автоспалювання, згідно з корисною моделлю, як хелатуючий агент та паливо використовують водний розчин поліетиленгліколю-2000 (ПЕГ-2000) у молярному співвідношенні метал:ПЕГ-2000=1:1, реакцію автоспалювання здійснюють при температурі 350 °C, забезпечуючи утворення однорідних наночастинок шпінелі із розмірами 7-12 нм без значної агломерації з намагніченістю в діапазоні 17,8-27,8 е.м.о./г, а процес синтезу шпінельної структури здійснюють в одну стадію без додаткового прожарювання.

У способі синтезу шпінелей MeFe_2O_4 як хелатуючий агент та паливо використовується водний розчин поліетиленгліколю із середньою молекулярною масою 2000 г/моль (ПЕГ-2000), який забезпечує утворення стабільного золю без застосування лимонної кислоти або інших органічних комплексоутворювачів. При змішуванні водних розчинів нітратів металів $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ або $\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ та $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ із ПЕГ-2000 у молярному співвідношенні метал: ПЕГ-2000=1:1 формується гомогенний прекурсор, який після висушування піддається реакції автоспалювання при температурі 350 °C.

Корисна модель представлена кресленнями:

Фіг. 1. Блок-схема способу синтезу магнітної нанорозмірної шпінелі MeFe_2O_4 ($\text{Me}=\text{Cu}, \text{Mg}, \text{Ni}, \text{Co}$), що включає стадії розчинення солей металів, введення ПЕГ-2000, утворення гелю, сушіння та автоспалювання з утворенням кінцевого продукту.

Фіг. 2. Рентгенограма (XRD) синтезованого матеріалу CuFe_2O_4 , яка підтверджує формування однофазної шпінельної структури без домішок оксидів. Експериментально отримані значення для синтезованого матеріалу CuFe_2O_4 позначено символами (-o-), а результати наближення

експериментальних значень за методом Рітвельда позначено суцільною лінією. Цифрами позначено положення зафіксованих основних рефлексів просторової групи шпінелі, що має симетрію Fd3m: 1 - (220), 2 - (311), 3 - (222), 4 - (400), 5 - (224), 6 - (333), 7 - (533), а відповідні кутові положення на графіку позначено вертикальними штрихами.

5 Фіг. 3. Рентгенограма (XRD) синтезованого матеріалу MgFe_2O_4 , яка підтверджує формування однофазної шпінельної структури без домішок оксидів. Експериментально отримані значення для синтезованого матеріалу MgFe_2O_4 позначено символами (-o-), а результати наближення експериментальних значень за методом Рітвельда позначено суцільною лінією. Цифрами позначено положення зафіксованих основних рефлексів просторової групи шпінелі, що має симетрію Fd3m: 1 - (220), 2 - (311), 3 - (222), 4 - (400), 5 - (224), 6 - (333), 7 - (533), а відповідні кутові положення на графіку позначено вертикальними штрихами.

15 Фіг. 4. Рентгенограма (XRD) синтезованого матеріалу NiFe_2O_4 , яка підтверджує формування однофазної шпінельної структури без домішок оксидів. Експериментально отримані значення для синтезованого матеріалу NiFe_2O_4 позначено символами (-o-), а результати наближення експериментальних значень за методом Рітвельда позначено суцільною лінією. Цифрами позначено положення зафіксованих основних рефлексів просторової групи шпінелі, що має симетрію Fd3m: 1 - (220), 2 - (311), 3 - (222), 4 - (400), 5 - (224), 6 - (333), 7 - (533), а відповідні кутові положення на графіку позначено вертикальними штрихами.

20 Фіг. 5. Рентгенограма (XRD) синтезованого матеріалу CoFe_2O_4 , яка підтверджує формування однофазної шпінельної структури без домішок оксидів. Експериментально отримані значення для синтезованого матеріалу CoFe_2O_4 позначено символами (-o-), а результати наближення експериментальних значень за методом Рітвельда позначено суцільною лінією. Цифрами позначено положення зафіксованих основних рефлексів просторової групи шпінелі, що має симетрію Fd3m: 1 - (220), 2 - (311), 3 - (222), 4 - (400), 5 - (224), 6 - (333), 7 - (533), а відповідні кутові положення на графіку позначено вертикальними штрихами.

25 Фіг. 6. Результати трансмісійної електронної мікроскопії (TEM) CuFe_2O_4 , що свідчать про однорідний нанорозмірний характер (7-12 нм) синтезованого матеріалу.

30 Фіг. 7. Результати трансмісійної електронної мікроскопії (TEM) MgFe_2O_4 , що свідчать про однорідний нанорозмірний характер (7-12 нм) синтезованого матеріалу.

Фіг. 8. Результати трансмісійної електронної мікроскопії (TEM) NiFe_2O_4 , що свідчать про однорідний нанорозмірний характер (7-12 нм) синтезованого матеріалу.

Фіг. 9. Результати трансмісійної електронної мікроскопії (TEM) CoFe_2O_4 , що свідчать про однорідний нанорозмірний характер (7-12 нм) синтезованого матеріалу.

35 Фіг. 10. Петлі намагнічування (M(H)) синтезованих шпінелей MeFe_2O_4 (Me=Cu (-□-), Mg (-o-), Ni (-△-), Co(-☆-)), які демонструють значення намагніченості насичення (наведено на вставці 1 зі збільшенням масштабу: $M_s(\text{CuFe}_2\text{O}_4)=23,71$ е.м.о./г, $M_s(\text{MgFe}_2\text{O}_4)=17,88$ е.м.о./г, $M_s(\text{NiFe}_2\text{O}_4)=23,62$ е.м.о./г, $M_s(\text{CoFe}_2\text{O}_4)=27,78$ е.м.о./г) та коерцитивної сили (наведено на вставці 2 зі збільшенням масштабу).

40 Фіг. 11. ІЧ-спектри (FTIR) синтезованих шпінелей MeFe_2O_4 (Me=Cu(-□-), Mg (-o-), Ni (-△-), Co(-☆-)), що підтверджують наявність характеристичних коливань зв'язків Me-O. Положення коливань позначено штрихами та цифрами 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8 для зв'язків Me-O у тетра- (544 см^{-1} , 570 см^{-1} , 546 см^{-1} , 538 см^{-1}) та октаедричних (381 см^{-1} , 372 см^{-1} , 376 см^{-1} , 381 см^{-1}) позиціях шпінельної структури відповідно.

45 Відмінною ознакою корисної моделі є застосування ПЕГ-2000 із середньою молекулярною масою 2000 г/моль замість традиційної лимонної кислоти чи її сумішей, що забезпечує:

- інтенсивне та повне протікання реакції автоспалювання,
- утворення наночастинок із розмірами 7-12 нм без значної агломерації (фіг. 6, 7, 8, 9),
- одержання типових значень намагніченості насичення (M_s): CuFe_2O_4 -23,71 е.м.о./г, MgFe_2O_4 -17,88 е.м.о./г, NiFe_2O_4 -23,62 е.м.о./г, CoFe_2O_4 -27,78 е.м.о./г (фіг. 10).

50 Технічним результатом є одержання в одну стадію хімічно стабільних наночастинок магнітних шпінелей MeFe_2O_4 із покращеними магнітними характеристиками, придатних для застосування у високочастотній електроніці, поглиначах електромагнітних хвиль та в медико-біологічних цілях.

55 Приклади конкретного виконання.

Приклад 1. Синтез CuFe_2O_4 .

60 7,25 г нітрату міді(II) тригідрату ($\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$) та 20,2 г нітрату заліза(III) дев'ятигідрату ($\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) розчиняють у 50 мл двічі дистильованої води при кімнатній температурі. До отриманого розчину додають водний розчин поліетиленгліколю 2000 із середньою молекулярною масою 2000 г/моль у молярному співвідношенні метал: ПЕГ-2000=1:1. Суміш

перемішують до утворення прозорого золю, який висушують до ксерогелю. Подальший нагрів при 350 °C ініціює реакцію автоспалювання, що завершується утворенням нанорозмірного CuFe_2O_4 з однофазною шпінельною структурою (фіг. 2). Середній розмір частинок за ТЕМ становить 8-10 нм (фіг. 6), намагніченість насичення $M_s=23,71$ е.м.о./г (фіг. 10). ІЧ-спектральний

аналіз (фіг. 11) підтвердив наявність метал-оксидних зв'язків у тетра- та октаедричних позиціях.

Приклад 2. Синтез MgFe_2O_4 .

5,13 г нітрату магнію гексагідрату ($\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) та 20,2 г нітрату заліза(III) дев'ятигідрату ($\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) розчиняють у 50 мл двічі дистильованої води. Додають розчин ПЕГ-2000 у співвідношенні метал: ПЕГ-2000=1:1, перемішують до утворення золю. Після висушування ксерогель піддають автоспалюванню при 350 °C. Отримують наночастинки MgFe_2O_4 з однофазною шпінельною структурою (фіг. 3) розміром 7-12 нм (фіг. 7), $M_s=17,88$ е.м.о./г (фіг. 10). ІЧ-спектральний аналіз (фіг. 11) підтвердив наявність метал-оксидних зв'язків у тетра- та октаедричних позиціях.

Приклад 3. Синтез NiFe_2O_4 .

5,82 г нітрату нікелю гексагідрату ($\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) та 20,2 г ($\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) розчиняють у 50 мл двічі дистильованої води. Вводять ПЕГ-2000 у молярному співвідношенні метал: ПЕГ-2000=1:1, перемішують до утворення золю. Після висушування гелю автоспалахує при 350 °C з утворенням NiFe_2O_4 з однофазною шпінельною структурою (фіг. 4) нанорозмірного діапазону (8-11 нм) (фіг. 8), $M_s=23,62$ е.м.о./г (фіг. 10). ІЧ-спектральний аналіз (фіг. 11) підтвердив наявність метал-оксидних зв'язків у тетра- та октаедричних позиціях.

Приклад 4. Синтез CoFe_2O_4 .

5,82 г нітрату кобальту гексагідрату ($\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) та 20,2 г ($\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) розчиняють у 50 мл двічі дистильованої води. Додають ПЕГ-2000 (співвідношення 1:1), перемішують до гомогенного золю, висушують і проводять автоспалювання при 350 °C. Отримують CoFe_2O_4 наночастинки з однофазною шпінельною структурою (фіг. 5) розмірами 7-10 нм (фіг. 9), $M_s=27,78$ е.м.о./г (фіг. 4). ІЧ-спектральний аналіз (фіг. 11) підтвердив наявність метал-оксидних зв'язків у тетра- та октаедричних позиціях.

Таким чином, заявлений спосіб синтезу магнітної нанорозмірної шпінелі MeFe_2O_4 ($\text{Me}=\text{Cu}, \text{Mg}, \text{Ni}, \text{Co}$) забезпечує:

- отримання однорідних, неагломерованих наночастинок розміром 7-12 нм порівняно з 30-40 нм для найближчого аналога;
- формування стабільної шпінельної структури без сторонніх оксидних фаз;
- спрощення технології завдяки заміні лимонної кислоти та етиленгліколю на ПЕГ-2000, що виконує функції палива і хелатуючого агента;
- проведення процесу в одну стадію при температурі ініціювання автоспалювання 350 °C без додаткових етапів прожарювання;
- отримання типових магнітних характеристик ($M_s=17,8-27,8$ е.м.о./г залежно від катіона Me);
- можливість широкого практичного застосування в радіоелектроніці, для поглинання електромагнітних хвиль, у медико-біологічних цілях (гіпертермія, МРТ-діагностика, наномедицина), а також як каталізаторів фотохімічних процесів.

Перелік використаної літератури

1. Спосіб отримання складних різнометальних оксидів стехіометричного складу зі структурою шпінелі: пат. 48434 Україна: C04B 35/26. № 2001075296; заявл. 24.07.2001; опубл. 15.08.2002, Бюл. № 8. - 4 с.

2. Низькотемпературний нанорозмірний каталізатор структури шпінелі MeFe_2O_4 ($\text{Me}=\text{Co}, \text{Ni}, \text{Mn}$) для глибокого окислення вуглеводнів: пат. 71394 Україна: B01J 23/74, B01J 37/00. № 20031212609; заявл. 26.12.2003; опубл. 15.11.2004, Бюл. № 11. - 4 с.

3. Спосіб одержання ферит-хромітів магнію шляхом сумісного осадження гідроксидів: пат. 86201 Україна: C01G 49/00, C01G 37/00. № a200512223; заявл. 19.12.2005; опубл. 10.04.2009, Бюл. № 7. - 4 с.

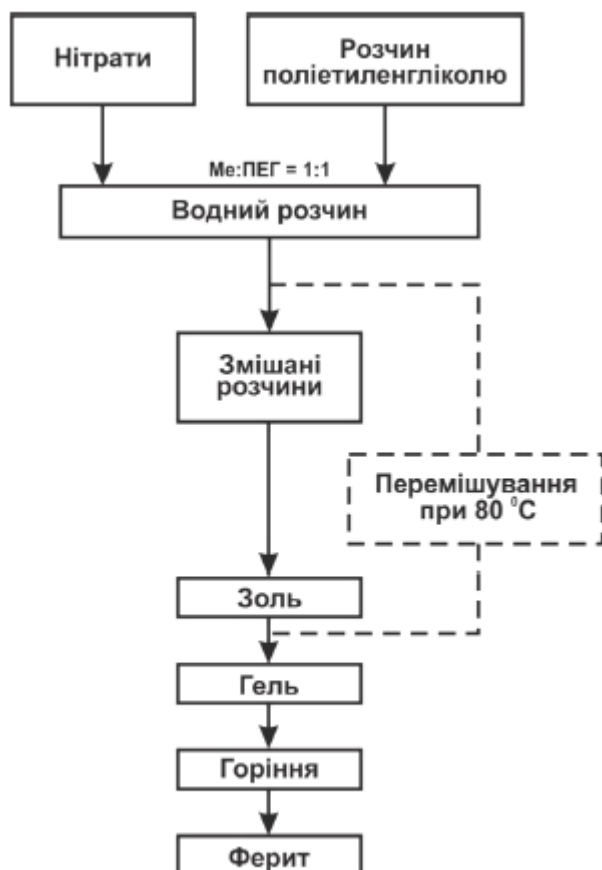
4. Спосіб одержання дисперсного фериту кобальту: пат. 120232 Україна: C01G 49/00, C01G 51/00. № a201809170; заявл. 06.09.2018; опубл. 25.10.2019, Бюл. № 20. - 4 с.

5. Спосіб отримання феритових матеріалів зі структурою шпінелі з кристалітами нанорозмірного діапазону: пат. 149889 Україна: C01G 49/00, C01G 53/00. № u202100500; заявл. 08.02.2021; опубл. 15.12.2021, Бюл. № 50. - 4 с.

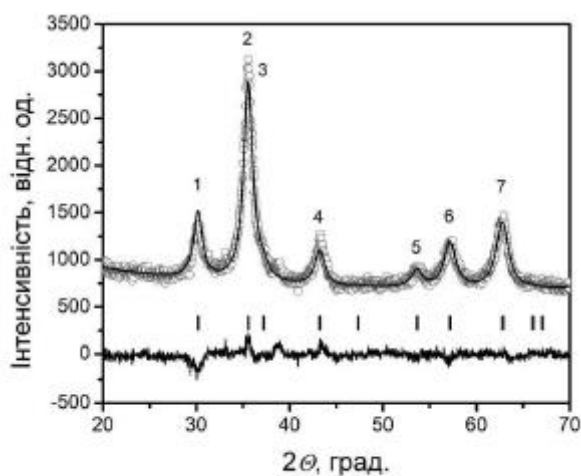
ФОРМУЛА КОРИСНОЇ МОДЕЛІ

Спосіб синтезу магнітної нанорозмірної шпінелі MeFe_2O_4 , де $\text{Me}=\text{Cu}, \text{Mg}, \text{Ni}, \text{Co}$, що реалізується при високих температурах методом золь-гель автоспалювання з використанням хелатуючого

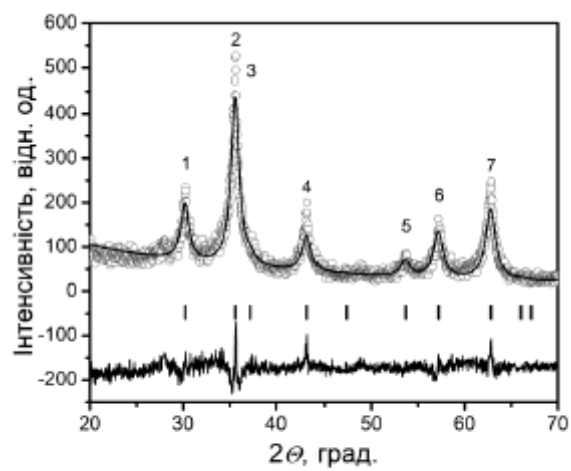
- 5 агента та включає змішування водних розчинів нітратів двовалентного металу та нітрату заліза (III), утворення золю, висушування одержаного прекурсора та проведення реакції автоспалювання, який **відрізняється** тим, що як хелатуючий агент та паливо використовують водний розчин поліетиленгліколю-2000 (ПЕГ-2000) у молярному співвідношенні метал:ПЕГ-2000=1:1, реакцію автоспалювання здійснюють при температурі 350 °С, забезпечуючи утворення однорідних наночастинок шпінелі із розмірами 7-12 нм без значної агломерації з намагніченістю в діапазоні 17,8-27,8 е.м.о./г, а процес синтезу шпінельної структури здійснюють в одну стадію без додаткового прожарювання.



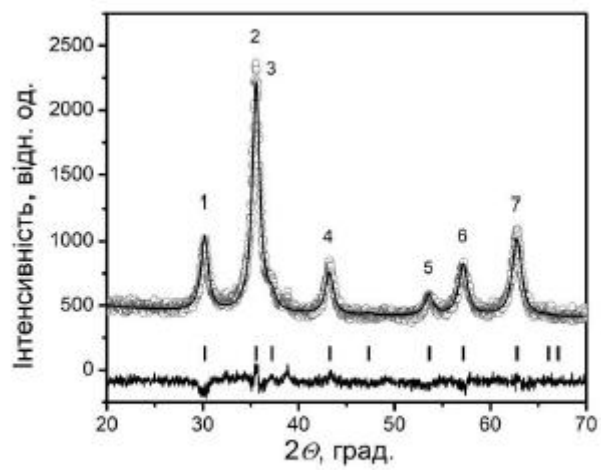
Фиг. 1



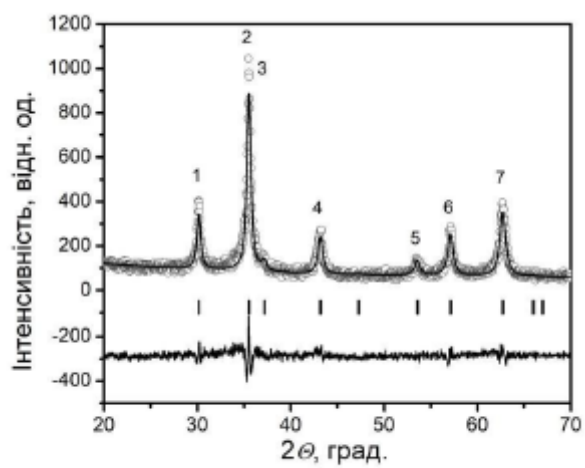
Фиг. 2



Фіг. 3



Фіг. 4



Фіг. 5

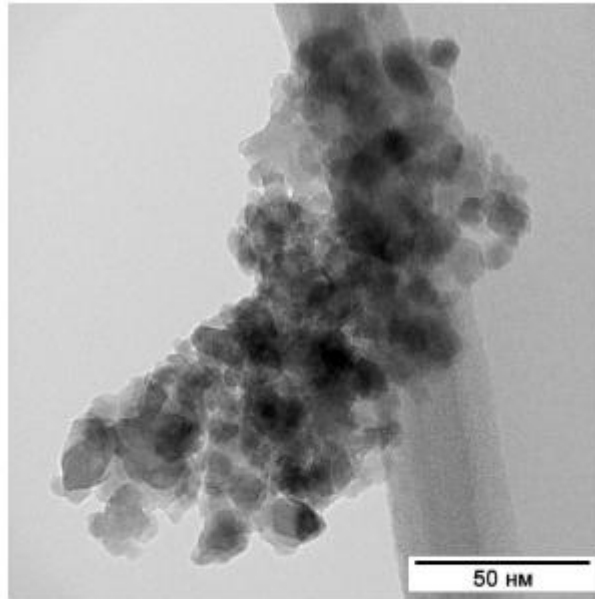


Fig. 6

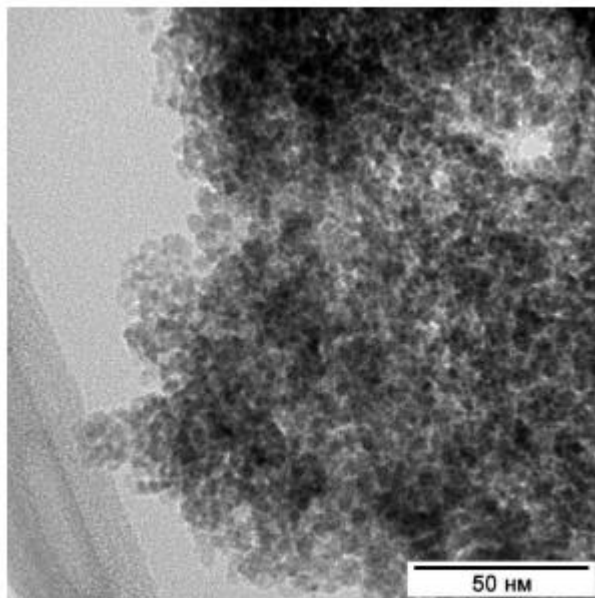


Fig. 7

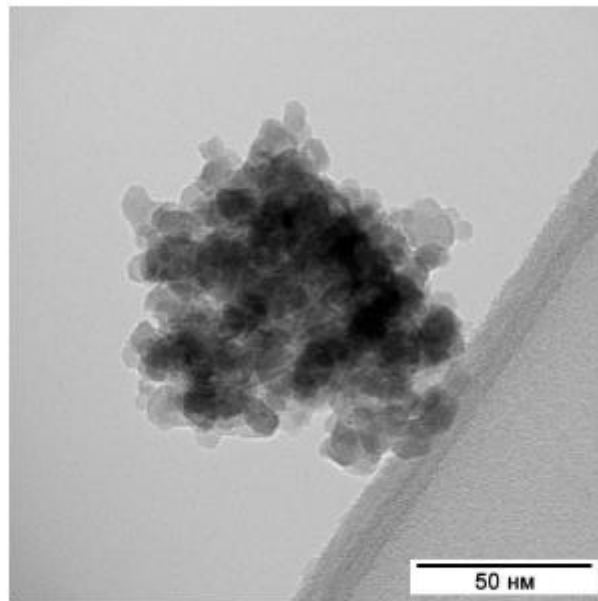


Fig. 8

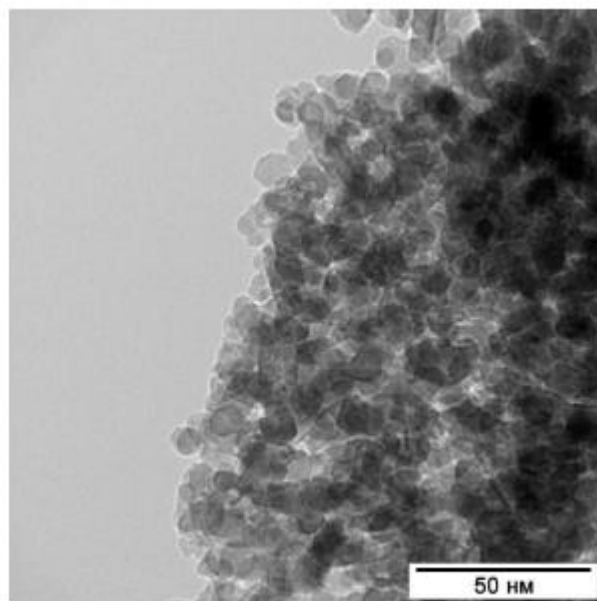
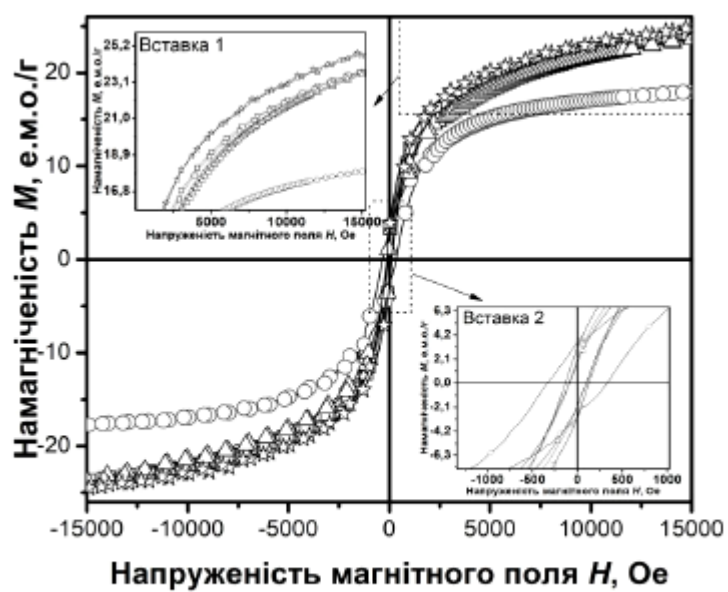
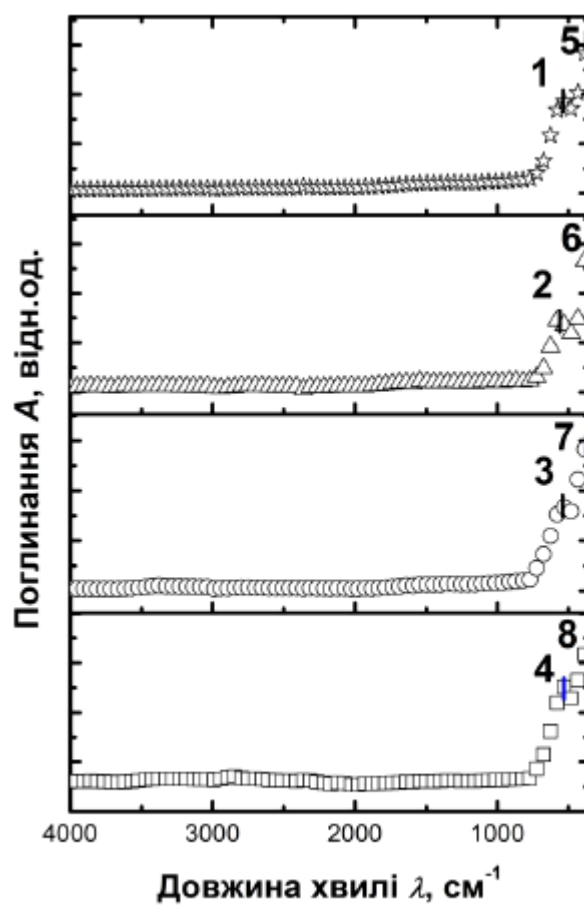


Fig. 9



Фіг. 10



Фіг. 11