# PENGARUH PENAMBAHAN Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> TERHADAP KARAKTERISTIK KERAMIK CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> UNTUK TERMISTOR NTC

Wiendartun<sup>1)</sup>, Endi Suhendi<sup>1)</sup>, Andhy Setiawan<sup>1)</sup>, Dani Gustaman Syarif<sup>2)</sup>, Guntur DS<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> Jurusan Fisika FMIPA UPI, Jl.Dr Setiabudhi 229 Bandung, email: wien@upi.edu <sup>2)</sup> PTNBR BATAN, Jl.Tamansari 71 Bandung, email: danigustas@batan-bdg.go.id

#### Abstrak.

Pengaruh penambahan Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> terhadap karakteristik keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> untuk thermistor NTC telah dilakukan. Keramik ini dibuat dengan cara mengepres serbuk bahan campuran homogen dari CuO, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> dan Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (0, 0,25 dan 0,75 % berat ) dengan komposisi yang sesuai untuk menghasilkan keramik berbasis CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> dan menyinter pellet hasil pengepresan pada suhu 1100  $^{\circ}$ C selama 2 jam di dalam atmosfer udara. Karakterisasi listrik dilakukan dengan cara mengukur resistivitas listrik keramik tersebut pada suhu bervariasi ( 25  $^{\circ}$ C-100  $^{\circ}$ C). Analisis struktur mikro dan struktur kristal dilakukan masing-masing dengan menggunakan mikroskop optik dan difraktometer sinar-x (XRD). Analisis XRD menunjukkan bahwa CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> tanpa dan dengan penambahan Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> mempunyai struktur kristal spinel tetragonal. Dari data XRD, tampilan untuk phase kedua tidak dapat ter identifikasi .Berdasarkan data listriknya diketahui bahwa penambahan Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> memperbesar konstanta thermistor (B) dan resistivitas listrik suhu ruang ( $\rho_{RT}$ ). Untuk keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> diperoleh harga B = 2548-2590  $^{\circ}$ K dan  $\rho_{RT}$  = 290-818  $\Omega$ cm), dari keramik berbasis CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> *Al*<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

#### Abstract.

The effect of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> addition on the characteristics of CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ceramics for NTC thermistors has been studied. The ceramics were produced by pressing a homogenous mixture of CuO, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (0, 0.25 and 0.75 w/o) powders in appropriate proportions to produce CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> based ceramics and sintering the pressed powder at 1100 <sup>o</sup>C for 2 hours in air. Electrical characterization was done by measuring electrical resistivity of the ceramics at various temperatures (25 <sup>o</sup>C-100<sup>o</sup>C). Microstructure and crystal structure analyses were carried out by using an optical microscope and x-ray diffractometer (XRD), respectively. The XRD analyses showed that the CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> with and without Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> addition have crystal structure of tetragonal spinel. The presence of second phase could not be identified from the XRD data. According to the electrical data, it was known that the Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> addition increased the thermistor constant (B) and the room temperature electrical resistivity ( $\rho_{RT}$ ). The value of B and ( $\rho_{RT}$ ) of the produced CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ceramics namely B = 2548-2590 <sup>o</sup>K and  $\rho_{RT}$  = 290-818  $\Omega$ cm), fitted market requirement.

Key words : Thermistor, NTC, CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

1. PENDAHULUAN.

Thermistor NTC sudah sangat luas digunakan didunia, karena kemampuannnya untuk digunakan di berbagai bidang electronik seperti : pengukur suhu , pembatas arus listrik, sensor aliran air, sensor tekanan [1]. Telah dikenal bahwa sebagian besar termistor NTC dibuat dari keramik berstruktur spinel yang dibentuk oleh oksida logam transisi dengan rumus umum AB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> dengan A adalah ion logam pada posisi tetrahedral dan B adalah ion logam pada posisi octahedral [2-10]. Banyak penelitian dilakukan untuk memperbaiki karakteristik termistor NTC berstruktur spinel [6, 7, 11]. Sejauh ini studi untuk mempelajari pengaruh penambahan Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> terhadap karakteristik spinel keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> belum dilakukan.

Pada umumnya, keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> digunakan sebagai magnet lunak [12-15] juga sebagai katalis [16-18], tetapi sebenarnya keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> mempunyai kemampuan untuk menjadi thermistor NTC karena bersifat semi konduktif. Berdasarkan diagram fase CuO-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [19], ada suatu daerah dimana komposisi keramik CuO dan Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bila dipanaskan pada suhu 1100  $^{0}$ C akan mempunyai sebuah struktur mikro yang berisi fase cair. Pada suhu ruang , material yang meleleh ini mungkin akan berada di batas butir. Secara teori material batas butir akan berpengaruh pada karakteristik keramik, khususnya pada karakteristik listrik. Pada saat zat additif (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) ditambahkan, karakteristik dari CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> akan berubah sebab kemungkinan ada dua kondisi. Kondisi itu adalah, pertama, aditif (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) larut padat di dalam CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> dengan cara mensubstitusikan ion-ion Cu ataupun ion-ion Fe, kedua, aditif (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) tidak dapat larut tetapi meleleh pada batas butir dan pada keadaan tertentu akan bereaksi dengan fase cair.

Pada saat kondisi pertama terbentuk , ketika substitusi dari  $Fe^{3+}$  dan / atau  $Cu^{2+}$  menghasilkan electron bebas pada pita konduksi, keramik  $CuFe_2O_4$  akan mempunyai resistivitas listrik yang rendah. Sebaliknya pada saat kondisi kedua terjadi, resistivitas listriknya mungkin semakin tinggi sebab keberadaan aditif (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) dibats butir akan mengubah struktur mikronya. Di dalam penelitian kami sebelumnya [11], telah diketahui bahwa penambahan TiO<sub>2</sub>, resistivitas listrik pada suhu ruang ( $\rho_{RT}$ ) dan konstanta thermistor (B) cenderung mengalami kenaikan. Pada penelitian ini kami ingin mengetahui bagaimana pengaruh penambahan Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> terhadap karakteristik keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> untuk thermistor NTC, khususnya karakteristik listik berdasarkan pada hipotesis yang disebutkan diatas Hasilnya dibandingkan dengan penelitian kami sebelumnya.

#### 2. TINJAUAN PUSTAKA

Termistor NTC mempunyai karakteristik yang khas seperti gambar 1 dibawah ini



Gambar 1. Grafik hubungan antara Temperatur (T) dan Resistivitas listrik (R) untuk thermistor NTC dan sensor lainnya.

Tahanannya akan berkurang secara eksponensial, jika suhu termistor bertambah. Hubungan antara tahanan dan suhu termistor diekspresikan pada persamaan (1) [2-11]

$$\mathbf{R} = \mathbf{R}_0. \text{ Eksp.}(\frac{B}{T})....(1)$$

Dengan

R = Tahanan termistor (Ohm)

 $R_0$  = Tahanan termistor pada suhu awal (Ohm)

 $B = Konstanta termistor (^{o}K)$ 

T =Suhu termistor ( $^{\circ}K$ )

Konstanta termistor (B) dari persamaan (1) dapat ditulis menjadi persamaan (2)[6],

Dengan

B = Konstanta termistor (°K) $\Delta E = Energi aktivasi (eV),$ 

K = Konstanta Boltzmann 
$$\left(\frac{eV}{\circ K}\right)$$

Secara empiris konstanta B sering pula dihitung menggunakan persamaan (3)[1,2]

Dengan

R1 = Tahanan pada suhu T1 R2 = Tahanan pada suhu T2 T2 =  $85^{\circ}C$  =  $358,16^{\circ}K$ T1 =  $25^{\circ}C$  =  $298,16^{\circ}K$ 

Sensitivitas termistor dapat diketahui dengan memakai persamaan (4)[1,11],

dengan

 $\alpha$  = Sensitifitas termistor,

 $B = Koefisien termistor dalam {}^{o}K$ 

 $T = suhu dalam {}^{o}K$ 

Semakin besar harga  $\alpha$  dan B, kualitas termistor semakin baik.

### **3. METODE PENELITIAN**

Serbuk CuO, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> dan aditif Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sebesar 0; 0,25 dan 0,75 % berat ditimbang dengan komposisi yang sesuai untuk membuat keramik berbasis CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. Campuran serbuk tersebut dikalsinasi pada suhu 800 <sup>0</sup>C selama 2 jam. Setelah dikalsinasi serbuk campuran digerus dan diayak dengan ayakan yang berukuran < 38  $\mu$ m. Serbuk hasil ayakan di press dengan tekanan 4 ton/cm<sup>2</sup> sehingga membentuk pellet mentah. Setelah kering , pelet mentah kemudian disinter pada suhu 1100 <sup>0</sup>C selama 2 jam dalam atmosfer udara tungku. Pelet hasil sinter dipotret untuk mengetahui penampilan visualnya.

Secara keseluruhan proses pembuatan keramik berbasis CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>.dengan aditif Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dapat diperlihatkan seperti diagram alir pada gambar 2 dibawah ini:



Gambar 2. Diagram alir proses penelitian.

Struktur kristal dari pellet yang sudah disinter kemudian dianalisis dengan difraksi sinarx (XRD) dengan menggunakan radiasi K $\alpha$  pada tegangan 40 kV dan 2rus 25 mA. Setelah melalui proses pengampelasan secara berjenjang dengan kertas amplas yang berbeda ukuran (nomor), pelet dipoles dan dietsa secara termal. Struktur mikro dari pellet ini di eksaminasi dengan mikroskop optik. Karakterisasi listrik dilakukan setelah kedua sisi pelet hasil sinter dilapisi dengan pasta konduktif perak. Setelah perekatnya kering di suhu ruang dan dipanaskan pada suhu 750  $^{0}$ C selama 10 menit . Karakterisasi listrik dilakukan melalui pengukuran resistvitas listrik pada berbagai suhu dari suhu 25  $^{0}$ C hingga 100°C dengan interval 5°C.

## 4. HASIL DAN PEMBAHASAN

#### 4.1. HASIL

Bentuk visual pellet keramik  $CuF_2O_4$  ditambah  $Al_2O_3$  ini dapat dilihat pada gambar 3, ternyata tampilan keramik ini terlihat baik.



Gambar. 3. Penampilan visual pellet keramik CuF<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ditambah Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ternyata tampilan keramik ini terlihat baik.

Hasil analisis XRD diperlihatkan pada gambar 4, 5 dan 6 yang menunjukkan pola difraksi keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> yang diberi penambahan aditif masing-masing sebesar 0; 0,25 dan 0,75 % berat .



Gambar 4. Pola difraksi sinar-x keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> tanpa aditif. Memperlihatkan struktur spinel tetragonal.



Gambar 5. Pola difraksi sinar-x keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> yang ditambah 0.25 w/o Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Memperlihatkan struktur spinel tetragonal.



Gambar 6. Pola difraksi sinar-x keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> yang ditambah 0.75 w/o Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. memperlihatkan struktur spinel tetragonal.

Data XRD pada gambar 4-6, memperlihatkan pola difraksi dari  $CuFe_2O_4$  adalah spinel tetragonal.

Hasil struktur mikro dari keramik  $CuFe_2O_4$  tanpa penambaan dan yang masing-masing ditambahkan 0,25 dan 0,75 % berat  $Al_2O_3$ .ditunjukkan pada gambar 7, 8, dan 9.



Fig. 7. Struktur mikro keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> tanpa penambahan Al<sub>2</sub>O<sub>3.</sub>



Gambar 8. Struktur mikro keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> yang ditambah 0.25 w/o Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.



Gambar 9. Struktur mikro keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> yang ditambah 0.75 w/o Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.



Hasil karakterisasi listrik diperlihatkan pada : gambar 10 dan tabel 1

Gambar 10. Hubungan antara ln Resistivitas listrik and 1/T keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> tanpa dan dengan aditif Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

No	Penambahan	В	α	$\rho_{RT}$
	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (w/o)	( <sup>0</sup> K)	(%/ <sup>0</sup> K)	(Ohm-cm)
1	0	2548	2,83	290
2	0,25	2378	2,64	217
3	0,75	2590	2,88	818

Tabel 1. Karakteristik listrik keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> tanpa dan dengan aditif Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

#### 4.2. PEMBAHASAN.

Penampilan visual pellet keramik CuF<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ditambah Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. ditunjukkan pada gambar 3, ternyata tampilan keramik ini terlihat baik, penampilan visual yang baik memperlihatkan bahwa parameter penyinteran yang digunakan sudah sesuai untuk membuat keramik yang baik.

Hasil analisis XRD diperlihatkan pada gambar 4, 5 dan 6 mempunyai pola difraksi yang hampir sama. Setelah dibandingkan dengan pola difraksi standart CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> dari JCPDS N0.34-0425, menunjukkan bahwa semua keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> tanpa dan dengan penambahan Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> mempunyai struktur kristal spinel tetragonal. Hal ini memperlihatkan bahwa pendinginan selama proses penyinteran berlangsung relatif lambat. Sedangkan untuk menghasilkan struktur kubik dibutuhkan pendinginan yang cepat. Puncak tambahan tidak teridentifikasi , kemungkinan karena konsentrasi aditif lebih kecil dari pada batas minimum ketelitian difraksometer sinar-x yang digunakan.. Terbentuknya CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> juga memperlihatkan bahwa sintesis dari CuO dan Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> pada suhu 1100°C selama 2 jam dapat dilakukan dengan baik.

Dari hasil struktur mikro yang ditunjukkan pada gambar 7, 8 dan 9 , butir-butir yang cenderung bundar disebabkan oleh material yang meleleh di batas butir. Menurut diagram fase CuO-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [19Anonymous, Phase diagram for Ceramists, ASTM.], terdapat material yang meleleh ada sekitar 15% mol, selama penyinteran pada suhu1100°C. Konsentrasi material yang meleleh relatif besar sehingga wajar jika butir-butir relatif sangat besar dan cenderung bundar.yang meleleh. Material yang meleleh di batas butir menjadi promotor pertumbuhan butir. Di dalam sampel yang mengandung Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, aditif dapat larut atau tersegregasi. Jika tidak ada interaksi antara material meleleh awal dan Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, serta Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> terlarut di dalam CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>

dengan mensubstitusi Fe<sup>3+</sup> atau Cu<sup>2+,</sup> maka resistivitas akan turun atau tetap. Akan turun ketika ion Al mensubstitusi ion Cu dan tidak berubah ketika mensubstitusi ion Fe<sup>3+</sup>. Pada kondisi ini struktur mikro akan sama dengan struktur mikro keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> tanpa aditif. Fitur material batas butir di dalam sampel yang ditambah Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (Gambar 8 dan 9 ) berbeda dengan fitur material batas butir keramik tanpa aditif ( gambar 7 ). Hal ini jelas memperlihatkan bahwa Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> cenderung tersegregasi di batas butir. Ada kemungkinan Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yang tersegregasi bereaksi dengan material leleh awal tetapi tidak dapat dilihat dari data XRD. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yang tersegregasi kemudian menghambat pertumbuhan butir. Tebal material batas butir keramik tanpa Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> lebih tipis dari tebal material yang sama pada keramik dengan aditif Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Inilah faktor yang dapat mengubah karakteristik listrik. Pada penelitian kami sebelumnya tentang pengaruh aditif SiO<sub>2</sub> dan aditif TiO<sub>2</sub>, ditemukan bahwa SiO<sub>2</sub> dan TiO<sub>2</sub> cenderung tersegregasi di batas butir. Ada kemungkinan bahwa material yang tersegregasi ini saling bereaksi dan menguap selama penyinteran dan meninggalkan rongga yang relatif besar.

Dari data listrik pada gambar 10 menunjukkan bahwa karakteristik listrik keramik mengikuti sifat dari thermistor NTC ( gambar 1 dan persamaan 1 ). Perubahan karakteristik listrik dipengaruhi oleh perubahan struktur mikro yang berubah dengan adanya  $Al_2O_3$ . Pertambahan ( $\rho_{RT}$ ) dan (B) utamanya disebabkan oleh perubahan fitur material batas butir. Keramik yang mengandung butir kecil dan banyak material batas butir mempunyai area batas butir yang luas. Karena batas butir menjadi pusat hamburan pembawa muatan, frekuensi relatif elektron bertambah menyebabkan pertambahan resistivitas listrik suhu ruang dan konstanta termistor.

Seperti terlihat pada tabel 1, semua keramik memiliki karakteristik yang memenuhi kriteria pasar. Harga resitivitas suhu ruang yang demikian kecil, menjadikan keramik ini mempunyai aplikabilitas yang luas.

#### 5. KESIMPULAN

Dengan penambahan  $Al_2O_3$ , menyebabkan ukuran butiran dari keramik  $CuFe_2O_4$ akan mengecil , sebab penambahan  $Al_2O_3$  memperlihatkan selama sintering meninggalkan rongga (pori) dan cenderung tersegregasi di batas butir . Penambahan aditif  $Al_2O_3$  akan menaikkan harga resistivitas listrik suhu ruang ( $\rho_{RT}$ ) dan konstanta thermistor (B). Nilai resistivitas listrik suhu ruang ( $\rho_{RT} = 290-818 \ \Omega cm$ ) dan konstanta thermistor (B = 2548-2590  $^{0}$ K) .Keramik CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> yang dibuat ini memenuhi kebutuhan pasar.

## 6. UCAPAN TERIMA KASIH

Kami mengucapkan terimakasih kepada semua pihak yang telah memberi bantuan dalam kegiatan penelitian dan penulisan artikel ini. Penelitian ini didanai oleh Hibah Penelitian Kerjasama Antar Perguruan Tinggi (Pekerti) dengan Kontrak Nomor: 014/SPPP/PP/DP2M/II/2006 tanggal 24 April 2006.

## 7. DAFTAR PUSTAKA

- 1. BetaTHERM Sensors [on line]. Available: http://www.betatherm.com.
- 2. NA EUN SANG, PAIK, UN GYU, CHOI SUNG CHURL, "The effect of a sintered microstructure on the electrical properties of a Mn-Co-Ni-O thermistor", Journal of Ceramic Processing Research, Vol.2, No. 1, pp 31-34, 2001.
- 3. MATSUO YOSHIHIRO, HATA TAKUOKI, KURODA TAKAYUKI, "Oxide thermistor composition, US Patent 4,324,702, April 13, 1982
- 4. JUNG HYUNG J, YOON SANG O, HONG KI Y, LEE JEON K, "Metal oxide group thermistor material", US Patent 5,246,628, September 21, 1993.
- 5. HAMADA KAZUYUKI, ODA HIROSHI, "Thermistor composition", US Patent 6,270,693, August 7, 2001.
- 6. PARK K, "Microstructure and electrical properties of  $Ni_{1.0Mn2-x}Zr_xO_4$  ( $0 \le x \le 1.0$ ) negative temperature coefficient thermistors", Materials Science and Engineering, B104, pp. 9-14, 2003.
- 7. PARK K, BANG D.Y., "Electrical properties of Ni-Mn-C0-(Fe) oxide thick film NTC thermistors", Journal of Materials Science: Materials in Electronics, Vol.14, pp. 81-87, 2003.
- FRITSCH SHOPIE GULEMET, SALMI JAOUAD, SARRIAS JOSEPH, ROUSSET ABEL, SCHUURMAN SHOPIE, LANNOO ANDRE, "Mechanical properties of nickel manganitesbased cermics used as negative temperature coefficient thermistors", Materials Research Bulletin, Vol. 39, pp. 1957-1965, 2004.
- 9. R. SCHMIDT, A. BASU, A.W. BRINKMAN, "Production of NTCR thermistor devices based on  $NiMn_2O_{4+\delta}$ ", Journal of The European Ceramic Society, Vol. 24, pp. 1233-1236, 2004.
- 10. K. PARK, I.H. HAN, "Effect of  $Al_2O_3$  addition on the microstructure and electrical properties of  $(Mn_{0,37}Ni_{0,3}Co_{0,33}xAl_x)O_4$  ( $0 \le x \le 0.03$ ) NTC thermistors", Materials Science and Engineering, B119, pp. 55-60, 2005.
- WIENDARTUN, DANI GUSTAMAN SYARIF, The Effect of TiO<sub>2</sub> Addition on the Characteristics of CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> Ceramics for NTC Thermistors, International Conference on Mathematics and Natural Sciences (ICMNS) 2006, ITB, Bandung, October 2006.

- 12. J.Z. JIANG, G.F. GOYA, H.R. RECHENBERG, J. Phys.: Condens. Mater 11, 4063 (1999).
- G.F.GOYA, H.R. RECHENBERG, J.Z JIANG, Journal of Magnetism and Magnetic Materials 218, 221 (2000).
- 14. G.F. GOYA, H.R. RECHENBERG, Journal of Applied Physics, 84 (2), 1101 (1998).
- 15. C.R. ALVES, R. AQUINO, M.H. SOUSA, H.R. RECHENBERG, G.F. GOYA, F.A. TOURINHO, J. DEPEYROT, *Journal of Metastable and Nanocrystalline Materials* 20-21, 694 (2004).
- KAMEOKA SATOSHI, TANABE TOYOKAZU, TSAI AN, Catalyst Letters, Vol. 100, No. 1-2, pp. 89-93, 2005.
- 17. W.F. SANGGUAN, Y. TERNAOKA, S. KAGAWA, *Applied Catalysis*, Part B, Vol. 16, N0.2, pp. 149-154, 1998.
- 18. R.C. WU, H.H. QU, H. HE. Y.B. YU, Applied Catalysis, Part B 48 (1), 49 (2004).
- 19. ANONYMOUS, Phase diagram for Ceramics, ASTM.
- 20 BARSOUM M., Fundamental of Ceramics, McGraw-Hill, 1997.