

Pengaruh Penggantian Ca dengan Nd pada Pembentukan Fase Bi-2223 pada Superkonduktor Sistem (Bi,Pb)-Sr-Ca-Cu-O:



(Influence of Nd Substitution for Ca on Formation of 2223 Phase in the Superconductors (Bi,Pb)-Sr-Ca-Cu-O System: $(\text{Bi}_{1.4}\text{Pb}_{0.6})\text{Sr}_2(\text{Ca}_{2-x}\text{Nd}_x)\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$)

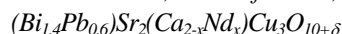
M. Sumadiyasa

Staf Pengajar Jurusan Fisika FMIPA Universitas Udayana Bali

ABSTRACT

The influence of Nd substitutions for Ca on formation of 2223 phase in the superconductors (Bi,Pb)-Sr-Ca-Cu-O system : $(\text{Bi}_{1.4}\text{Pb}_{0.6})\text{Sr}_2(\text{Ca}_{2-x}\text{Nd}_x)\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$ has been studied. Samples were made by solid state reaction methods, with sintering temperature at 860°C for 40 hours continuously in air atmosphere. From the XRD characterization it is revealed that the samples are poly crystals and the volume fraction of Bi-2223 phase is less than 45%. All of samples show Meissner effect weakly on 77 K, which is indicate that in the samples has formed few superconducting high-Tc phase. This result is in accords with of the resistivity as function of temperature measurement, show that the $T_{c-onset}$ at 88 K - 107 K, which is range of the critical temperature (Tc) of the Bi-2212 phase and Bi-2223 phase.

Keywords : Nd-substitution, volume fraction, critical temperature, Bi-2223 phase,



PENDAHULUAN

Sampai saat ini telah dapat dibuat superkonduktor berbasis bismuth (Bi) sistem (Bi,Pb)-Sr-Ca-Cu-O fase Bi-1212, Bi-2201, Bi-2212, Bi-2223 (Frank *et al.*, 1996, Chu, *et al.*, 1997, Maple, 1998). Di antara superkonduktor berbasis bismut tersebut senyawa $(\text{Bi,Pb})_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$ (fase Bi-2223) merupakan bahan superkonduktif yang telah banyak dikaji baik dari aspek eksperimen maupun aplikasinya. Dengan suhu kritisnya yang cukup tinggi ($T_c \sim 110$ K) fase Bi-2223 ini sangat berpotensi untuk diaplikasikan. Akan tetapi fase ini memiliki rapat arus kritis (J_c) yang cukup rendah dan mudah turun bila berada di dalam medan magnet dan suhu tinggi. Di samping itu, fase Bi-2223 masih belum dapat dibuat dalam bentuk kristal tunggal. Oleh karena itu sampai sekarang masih dilakukan penelitian baik untuk mendapatkan kristal tunggalnya maupun memperbesar rapat arus kritis (J_c)-nya dan meningkatkan ketahanannya di dalam medan magnet pada suhu tinggi.

Untuk kasus fase Bi-2212 peningkatan J_c dapat dilakukan dengan pemberian dan meningkatkan kekuatan piningnya (*pinning strength*) dengan melakukan substitusi Pb (Darminto, 2002). Sebelumnya, Rentschler *et al.* (1992) telah mencoba melakukan penggantian Ca dengan Nd. Diperoleh bahwa

ternyata Nd dapat menggantikan kedudukan Ca dalam struktur kristalnya dengan baik dan memberikan efek yang cukup baik terhadap peningkatan rapat arus kritis J_c -nya. Pada suhu 30 K dan medan magnet 0,4 Tesla, rapat arus J_c pada sampel yang mengandung Nd naik sekitar 30% dibandingkan dengan sampel tanpa Nd.

Dari pengetahuan di atas, sebelum melakukan penelitian lebih jauh tentang sifat-sifat J_c -nya : rapat arus kritis J_c dari fase Bi-2223 dan kemampuannya di dalam medan magnet tinggi pada suhu tinggi kami terlebih dahulu melakukan penelitian awal untuk mengetahui bagaimana pengaruh substitusi Nd dalam pembentukan kristal fase Bi-2223 : $(\text{Bi}_{1.4}\text{Pb}_{0.6})\text{Sr}_2(\text{Ca}_{2-x}\text{Nd}_x)\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$. Dari penelitian ini diharapkan diperoleh sampel dalam bentuk bulk fase Bi-2223 terdoping Nd, Dalam tulisan ini akan dibahas sejauh mana dampak penggantian Ca dengan Nd terhadap pembentukan fase Bi-2223-nya dan suhu kritis (T_c)-nya.

METODE

Sampel superkonduktor sistem Bi-Sr-Ca-Cu-O fase Bi-2223 terdoping Nd dibuat dari bahan Bi_2O_3 (Aldrich, 99.9+%), PbO (Aldrich, 99.9+%), SrCO_3 (Aldrich, 99.995%), Y_2O_3 (Aldrich, 99.999%), CaCO_3 (Aldrich, 99.995%), Nd_2O_3 (Aldrich, 99.99+%) dan CuO

(Aldrich, 99.99+%). Campuran awal dibuat dalam beberapa komposisi sesuai dengan stokiometri $(\text{Bi}_{1.4}\text{Pb}_{0.6})\text{Sr}_2(\text{Ca}_{2-x}\text{Nd}_x)\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$, dengan mengambil $x = 0,01, 0,025, 0,05$ dan $0,15$. Campuran yang telah dipersiapkan diproses menjadi superkonduktor dengan menggunakan metode reaksi padatan (*solid state reaction methods*). Pencampuran bahan awal dilakukan dengan cara menggerus di dalam mortar. Hasil pencampuran tersebut kemudian dikalsinasi pada suhu 810°C selama 20 jam. Hasil kalsinasi digerus kembali, kemudian dicetak menjadi pelet dengan diameter 12 mm dan tebal sekitar 2 mm. Selanjutnya, pelet dipanaskan (*sintering*) pada suhu 860°C selama 40 jam secara kontinyu pada tekanan atmosfer udara. Pendinginan sampel dilakukan sesuai dengan pendinginan di dalam tungku.

Karakterisasi sampel meliputi, pengamatan secara visual sifat penolakan sampel terhadap medan magnet (Efek Meisner) pada suhu 77 K. Untuk mengetahui telah terbentuk atau tidaknya kristal fase Bi-2223 dilakukan pengukuran XRD. Berdasarkan hasil pengukuran XRD dilakukan perhitungan fraksi volume (FV) fase Bi-2223 yang terbentuk, dengan persamaan

$$FV = \frac{\text{Intensitas fase Bi-2223}}{\text{Intensitas seluruh puncak}} \times 100 \% \quad \dots\dots\dots(1)$$

Pengukuran suhu kritis, T_c dilakukan melalui pengukuran resistivitas sebagai fungsi suhu dengan metode empat titik elektroda sejajar dengan arus dc.

HASIL DAN PEMBAHASAN

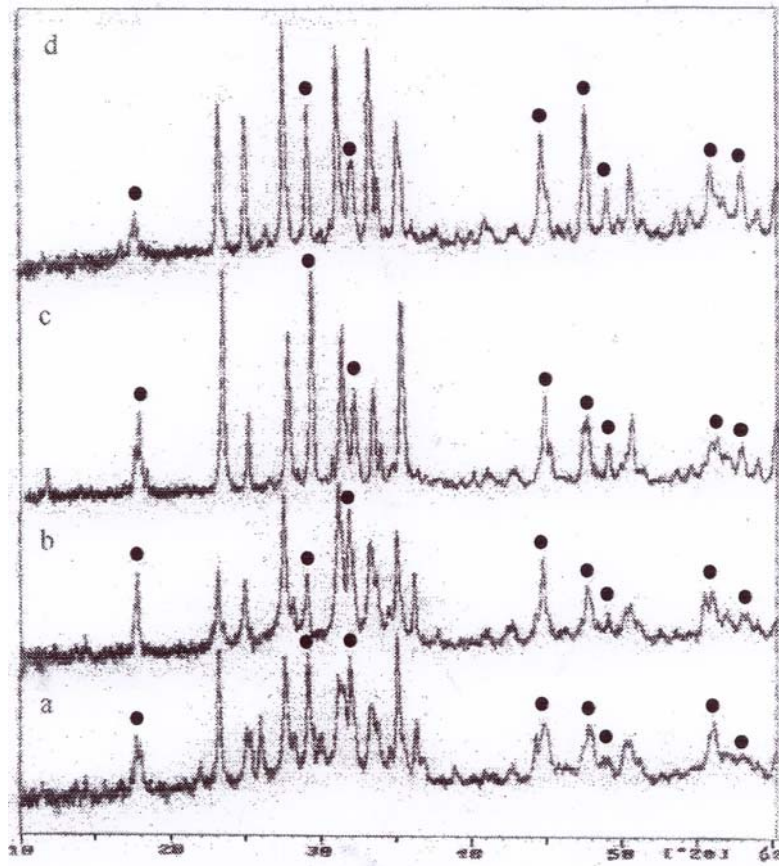
Pengukuran XRD dan Fraksi Volume

Gambar 1 memperlihatkan pola spektrum (difraktogram) hasil pengukuran XRD. Puncak-puncak (*peaks*) yang ditandai dengan lingkaran penuh adalah puncak-puncak yang berasal dari refleksi fase Bi-2223. Penandaan tersebut dilakukan dengan membandingkan spektrum XRD dari hasil penelitian dengan pola spektrum XRD referensi (Li *et al.*, 1996, JCPDS 1997), dan dengan mengambil parameter kisi $a = 5,4096 \text{ \AA}$, $b = 5,4191 \text{ \AA}$ dan $c = 37,062 \text{ \AA}$. Sedangkan puncak-puncak yang tidak ditandai adalah fase lain, yang mana disebut sebagai fase pengotor. Spektrum

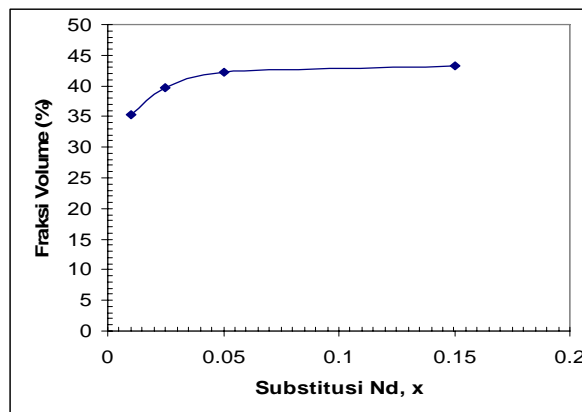
difraksi Gambar 1 memperlihatkan bahwa sampel masih bersifat polikristal, didominasi oleh fase pengotor. Hanya sedikit puncak-puncak yang dapat ditandai sebagai fase Bi-2223. Sesuai dengan hasil analisis fase pengotor tersebut adalah berasal dari fase superkonduktif fase Bi-2212 yang memiliki T_c sekitar 85 K. Ini ditandai oleh munculnya puncak pada sudut $2\theta = 23,1^\circ$ dan $27,5^\circ$. Juga terdeteksi adanya fase Bi-2201 (ditandai oleh puncak pada $2\theta = 29,8^\circ$) yang superkonduktif pada suhu rendah. Fase lainnya seperti fase SrCO_3 (ditandai oleh puncak pada $2\theta = 36,6^\circ$ dan $25,2^\circ$), CuO (ditandai oleh puncak pada $2\theta = 35,5^\circ$ dan $38,8^\circ$), Ca_2PbO_4 (ditandai oleh munculnya puncak pada $2\theta = 17,5^\circ$) merupakan fase non superkonduktif.

Dari penandaan spektrum XRD tersebut dan dengan menggunakan persamaan 1 dapat ditentukan besar fraksi volume fase Bi-2223 yang terbentuk. Gambar 2 memperlihatkan perubahan fraksi volume fase Bi-2223 dengan bertambahnya kandungan Nd pada sistem $(\text{Bi}_{1.4}\text{Pb}_{0.6})\text{Sr}_2(\text{Ca}_{2-x}\text{Nd}_x)\text{Cu}_3\text{O}_\delta$. Tampak bahwa fraksi volume fase Bi-2223 sedikit naik dengan bertambahnya kandungan Nd, tetapi masih kurang dari 45%. Tampak masih belum jelas memperlihatkan besar kandungan maksimum Nd yang diijinkan.

Uraian tersebut memperlihatkan bahwa belum seluruh bahan (kation) penyusun bereaksi dengan baik untuk membentuk fase Bi-2223 terdoping Nd. Sebagaimana telah diperlihatkan peneliti sebelumnya bahwa fase pengotor fase Bi-2212, Bi-2201, SrCO_3 , CuO , Ca_2PbO_4 sesungguhnya merupakan bahan dasar untuk pembentukan fase Bi-2223. Dengan sintesis yang tepat bahan dasar tersebut secara bersama dapat tereduksi menjadi fase Bi-2223 (Chen *et al.*, 1992). Waktu sintering 40 jam tampaknya belum cukup untuk dapat terbentuknya fase Bi-2223 terdoping Nd secara maksimal. Sebagaimana telah dilaporkan peneliti sebelumnya (Suharta, 1997, Manfredotti, *et al.*, 2001, Liang, *et al.* 2002, Muralidhar, *et al.*, 2003) untuk dapat menumbuhkan fase Bi-2223 (tanpa doping Nd) pada superkonduktor sistem Bi-Sr-Ca-Cu-O dengan fraksi volume lebih besar dari pada 90% memerlukan waktu lebih dari pada 100 jam.



Gambar 1. Pola XRD sampel sistem $(\text{Bi}_{1.4}\text{Pb}_{0.6})\text{Sr}_2(\text{Ca}_{2-x}\text{Nd}_x)\text{Cu}_3\text{O}_\delta$ Dari atas ke bawah, (a) $x = 0,01$, (b). $x = 0,025$, (c). $x = 0,05$, (d). $x = 0,15$, ● = fase Bi-2223, tanpa tanda = fase pengotor

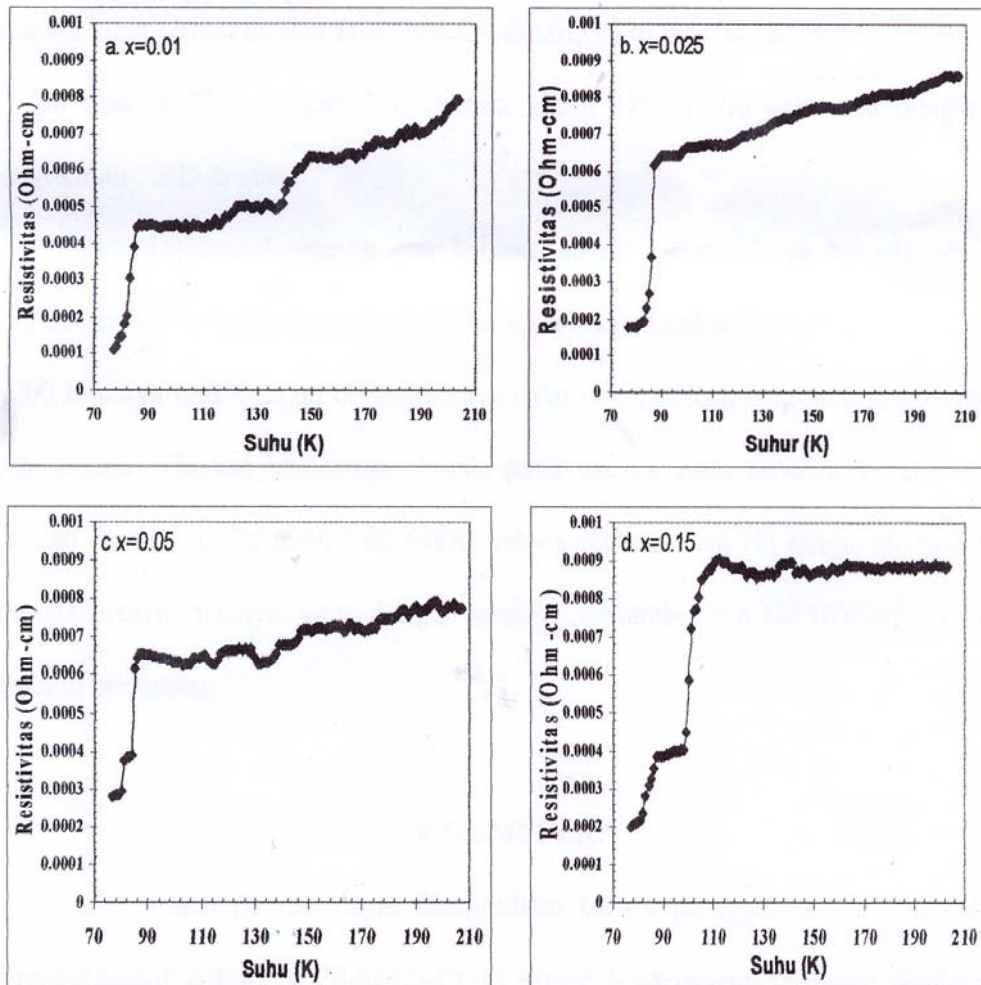


Gambar. 2. Grafik fraksi volume (%) fase Bi-2223 terhadap bertambahnya x pada formula $(\text{Bi}_{1.4}\text{Pb}_{0.6})\text{Sr}_2(\text{Ca}_{2-x}\text{Nd}_x)\text{Cu}_3\text{O}_\delta$

Efek Meissner dan Suhu Kritis, T_c

Pengamatan efek Meissner memperlihatkan bahwa ke empat sampel telah memperlihatkan adanya efek Meissner yang lemah. Ini mengindikasikan bahwa di dalam sampel telah ada fase superkonduktif pada suhu ~ 77 K. Hal ini didukung oleh hasil pengukuran resistivitas sebagai fungsi suhu antara 77 – 200 K, sebagaimana diberikan pada Gambar 3. Semuanya memperlihatkan adanya penurunan resistivitas secara tajam mulai pada suhu tertentu, yang mana disebut sebagai suhu mulai transisi $T_{c_{on-set}}$. Bila diperhatikan, Gambar 3a – 3c memperlihatkan adanya $T_{c_{on-set}}$ pada suhu 88 K, yang mana merupakan daerah suhu kritis resistivitas nol (T_{c_0}) dari fase Bi-2212. Akan tetapi sampai pada 77 K belum

memperlihatkan adanya resistivitas nol (T_{c_0}). Ini mengindikasikan bahwa sampel masih sangat didominasi oleh fase non-superkonduktif. Sedangkan kurva pada Gambar 3d, dengan jelas memperlihatkan adanya dua penurunan resistivitas secara tajam, yaitu mulai pada suhu $T_{c_{on-set}} = 88$ dan 107 K yang merupakan daerah suhu kritis dari pada fase Bi-2223. Dengan demikian ada indikasi bahwa di dalam sampel tersebut sesungguhnya telah terbentuk dua fase superkonduktif yaitu fase Bi-2212 dan fase Bi-2223. Ini konsisten dengan hasil pengukuran XRD di atas dimana dengan jelas spektrumnya memperlihatkan adanya puncak-puncak difraksi yang berasal dari fase Bi-2212 dan fase Bi-2223.



Gambar 3. Hasil pengukuran resistivitas sebagai fungsi suhu untuk sampel $(Bi_{1.4}Pb_{0.6})Sr_2(Ca_{2-x}Nd_x)Cu_3O_\delta$ dengan a. $x=0,01$; b. $x=0,025$; c. $x=0,05$; d. $x=0,15$

Dari Gambar 3 juga tampak bahwa dengan bertambahnya Nd ada perubahan kemiringan kurva mulai dari suhu 90 K ke atas. Pada Gambar 3a dan 3b, dari suhu 90 K – 200 K kurva naik dengan bertambahnya suhu, yang mana sesuai dengan sifat-sifat resistivitas dari pada logam. Tingkat kemiringan kurva pada daerah suhu tersebut berkurang pada Gambar 3c dan 3d. Ini memberi indikasi bahwa pemberian Nd sangat mempengaruhi sifat-sifat resistivitasnya, yaitu dengan semakin bertambahnya doping Nd sifat-sifat logamnya menjadi semakin berkurang.

KESIMPULAN

Dari uraian di atas dapat disimpulkan bahwa penggantian Ca dengan Nd pada superkonduktor sistem Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O sangat berpengaruh terhadap pembentukan fase Bi-2223 dan sifat-sifat superkonduktifnya. Dengan sintering pada suhu 860°C selama 40 jam, fraksi volume fase Bi-2223 yang terbentuk masih di bawah 45%. Sampel telah memperlihatkan adanya $T_{c\text{-on-set}}$ antara 80 K - 107 K, yang mana merupakan cermin dari adanya fase Bi-2212 dan 2223. Sifat-sifat logam berkurang dengan bertambahnya kandungan Nd.

DAFTAR PUSTAKA

- Chen Y. L. & Stevens, R., 1992. 2223 Phase Formation in (Bi,Pb)-Sr-Ca-Cu-O : II, The Role of Temperature Reaction Mechanism, *J. Am. Ceram. Soc.*, **75**, 1150 - 1158
- Chu C. W., Xue, Y. Y., Due, Z. L., Sun, Y.Y., Gao, L., Wu, N. L., Cao, Y., Rusakova, I., Ross, K., 1997. Superconductivity up to 126 Kelvin in Interstitially Doped $Ba_2Ca_{n-1}Cu_n$, $[02(n-1)n-Ba]$, *Science*, **277**, 1081 – 1983.
- Darminto 2002. Karakteristik Fase Gelas Vorteks dalam Kristal Tunggal Superkonduktor $(Bi,Pb)_2Sr_2Ca_2Cu_2O_{8+\delta}$, *Jurnal Ilmu Dasar*, **3**, 66 – 73.
- Frank H., Stollmann, R., Lethen, J., Muller, R., Gasparov, L. V., Zakharov, N. D., Hse, D., Guntherodt, G., 1996. Preparation and magnetic properties of (Bi, Pb)-1212, *Physica C* **268**, 100 – 106
- JCPDS International Centre for Diffraction Data, 1997. *PCPDFWIN* v. 1.30
- Li D. Y., Wang, H., Mackinnon, C. W., Low L. M., Davis, R. L., 1996. X-Ray Powder Diffraktion Data for High - Tc Superconductor $(Bi,Pb)_2Sr_2Ca_2Cu_3O_{10+x}$ (2223), *Powd. Diff.*
- Liang B., Lin, C.T., Shang, P., Yang, G., 2002. Single Crystals of Triple-layered Cuprates $Bi_2Sr_2Ca_2Cu_3O_{10-6}$ Growth, annealing and Characterization, *Physica C*, **383**, 75 – 88.
- Maple M. B., 1998, High-Temperature Superconductivity, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **177 – 181**, 18 – 30.
- Manfredotti C., Trucato, M., Rinando, G., Allosia, D., Volpe, P., Benzi, P., Agostino, A., 2001, Annealing Temperature Dependence of the 2223 Phase Volume Fraction in the Bi-Sr-Ca-Cu-O System, *Physica C*, **353**, 154 – 194.
- Muralidhar M., Jirsa, M., Sakai, N., Murakami, M., 2003, *Supercond. Sci. Technol.*, **16**, R1 –R16.
- Rentschler T., Kemmler-Sack, S., Hartmann, M., Hubbener, R. T., Kesler, P., Lichte, H, 1992, Influence of Nd Substitution on the Superconducting Properties of Ceramics in the 2212 System $Bi_{2-w}Sr_{2-y}(Ca_{1-y}Nd_{x+y})Cu_2O_{8+\delta}$, *Physica C*, **200**, 287 - 295.
- Suharta W. G. ,1997, Pengaruh Fluks B_2O_3 dan Beberapa Parameter Pemrosesan Pada Pembentukan Superkonduktor Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O-2223, *Tesis*, Pasca Sarjana Fisika, ITB.