

## Pengaruh Variasi Dopan Pb Pada Pembentukan Superkonduktor (Bi-Pb)-2223 Melalui Prekursor (Bi-Pb)-2212

P. H. Tjahjanti dan Dedi S

Program Studi Materials Science, Program Pascasarjana Universitas Indonesia

**P. H. Tjahjanti dan Dedi. S.** Pengaruh Variasi Dopan Pb Pada Pembentukan Superkonduktor (Bi-Pb)-2223 Melalui Prekursor (Bi-Pb)-2212, Jurnal Ilmu dan Rekayasa Material, Agustus 1999; 1(2): 27-34

### Abstrak

Penelitian ini bertujuan untuk memperoleh kandungan superkonduktor (Bi-Pb)-2223 setinggi mungkin dengan cara variasi doping Pb dengan proses sintesis dua tahap, juga untuk memahami mekanisme pembentukan superkonduktor yang bersangkutan khususnya peranan Pb di dalam proses tersebut. Metode 'basah' digunakan dalam pembentukan superkonduktor (Bi-Pb)-2223 yang dibuat melalui prekursor (Bi-Pb)-2212 dengan ditambah bahan pelengkap  $\text{Ca}_2\text{CuO}_3$  dan  $\text{CuO}$ . Perhitungan fraksi volume fase 2223 dan kurva  $\rho$ -T untuk sampel  $\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,4$ ) menunjukkan hasil yang terbaik. Doping Pb sebesar 0,4 merupakan harga paling optimal. Fraksi volume fase 2223 yang dicapai sebesar 92,34%, sedangkan  $T_c$  tertinggi yang dicapai adalah 110 K.

### Abstract

The goal of this experiment is to obtain the highest contents of high  $T_c$  superconductor (Bi - Pb) - 2223 with variation of Pb dopant, in a two step synthesized process, to understand the formation of phase and the role of Pb. Superconductor (Bi - Pb) - 2223 was formed from the precursor (Bi - Pb) - 2212 with addition of  $\text{Ca}_2\text{CuO}_3$  and  $\text{CuO}$ , all the process is done in 'wet' methode. From the volume fraction of XRD spectra and  $\rho$ -T curves, in found that sample  $\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2$  ( $x = 0.4$ ) is the best. The optimum Pb dopant is 0.4 and the highest  $T_c$  is 110K.

### Pendahuluan

Pembuatan superkonduktor (Bi-Pb)-2223 melalui fase (Bi-Pb)-2212 dikenal dengan cara reaksi dua tahap<sup>1,2</sup>, menghasilkan sampel dengan kualitas butir yang bagus, menghasilkan kualitas sampel fase tunggal 2223 yang bagus setelah sintering bertahap selama 50 jam dengan suhu 850°C serta memiliki laju transformasi pembentukan fase 2223 paling cepat. Usaha dalam rangka memperoleh kemurnian superkonduktor 2223 dengan cara pendopongan Pb masih banyak dilaksanakan<sup>3,4,5</sup>. Atas dasar

pemikiran di atas, jelas masih diperlukan eksperimen sintesis dengan variasi Pb, untuk mengoptimalkan formasi Bi-2223 melalui Bi-2212.

### Bahan dan Cara Kerja

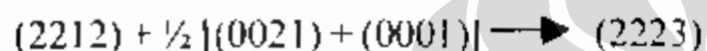
Sampel yang dibuat dengan komposisi kimia  $\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,2;0,3; 0,4$  dan 0,5) berasal dari  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  (99,9%),  $\text{PbO}$  (99,9%),  $\text{CaCO}_3$  (99,0%),  $\text{SrCO}_3$  (99,995%) dan  $\text{CuO}$  (99,99%). Pembentukan awal prekursor Bi-2212 melalui metode 'basah' yaitu mencampur semua bahan dengan asam

nitrat ( $\text{HNO}_3$ ) 65% dan aquades kemudian dipanaskan agar kering dan dikalsinasi pada suhu  $810^\circ\text{C}$  selama 10 jam. Selanjutnya sampel digerus dan dicetak pelet dengan ukuran tebal antara 1,5 - 2 cm dengan diameter 1,70 cm dan disinter dengan suhu  $820^\circ\text{C}$  selama 20 jam.

Dilakukan karakterisasi perhitungan fraksi volume bahan dengan peralatan Difraksi Sinar-X (XRD).

Senyawa pelengkap  $\text{Ca}_2\text{CuO}_3$  dan  $\text{CuO}$  di kalsinasi pada suhu  $900^\circ\text{C}$  selama 40 jam. Hasil yang diperoleh dikarakterisasi fraksi volumenya dengan XRD.

Pembentukan superkonduktor (Bi-Pb)-2223 menggunakan model <sup>6</sup>:



dengan (2212) adalah prekursor (Bi-Pb)-2212, (0021) adalah senyawa  $\text{Ca}_2\text{CuO}_3$  dan (0001) adalah  $\text{CuO}$ . Bahan pelengkap  $\text{Ca}_2\text{CuO}_3$ ,  $\text{CuO}$  dan Bi-2212, dicampur, digerus dan dicetak, dilakukan sintering pada suhu  $850^\circ\text{C}$  dengan waktu n jam. Digunakan waktu sintering 10 jam, 2 kali 10 jam, 3 kali 10 jam, 4 kali 10 jam, 4 kali 10 jam + 40 jam langsung dan 4 kali 10 jam + 40 jam langsung + 40 jam langsung. Untuk selanjutnya dibuat **perjanjian** untuk mempermudah ingatan, bahwa :

- *sintering 20 jam* berarti 2 kali 10 jam,
- *sintering 30 jam* berarti 3 kali 10 jam,
- *sintering 40 jam* berarti 4 kali 10 jam,
- *sintering 80 jam* berarti 4 kali 10 jam + 40 jam langsung
- *sintering 120 jam* berarti 4 kali 10 jam + 40 jam langsung + 40 jam langsung.

Setiap proses perlakuan sintering dilakukan karakterisasi  $T_c$  dan XRD

## Hasil Penelitian dan Diskusi

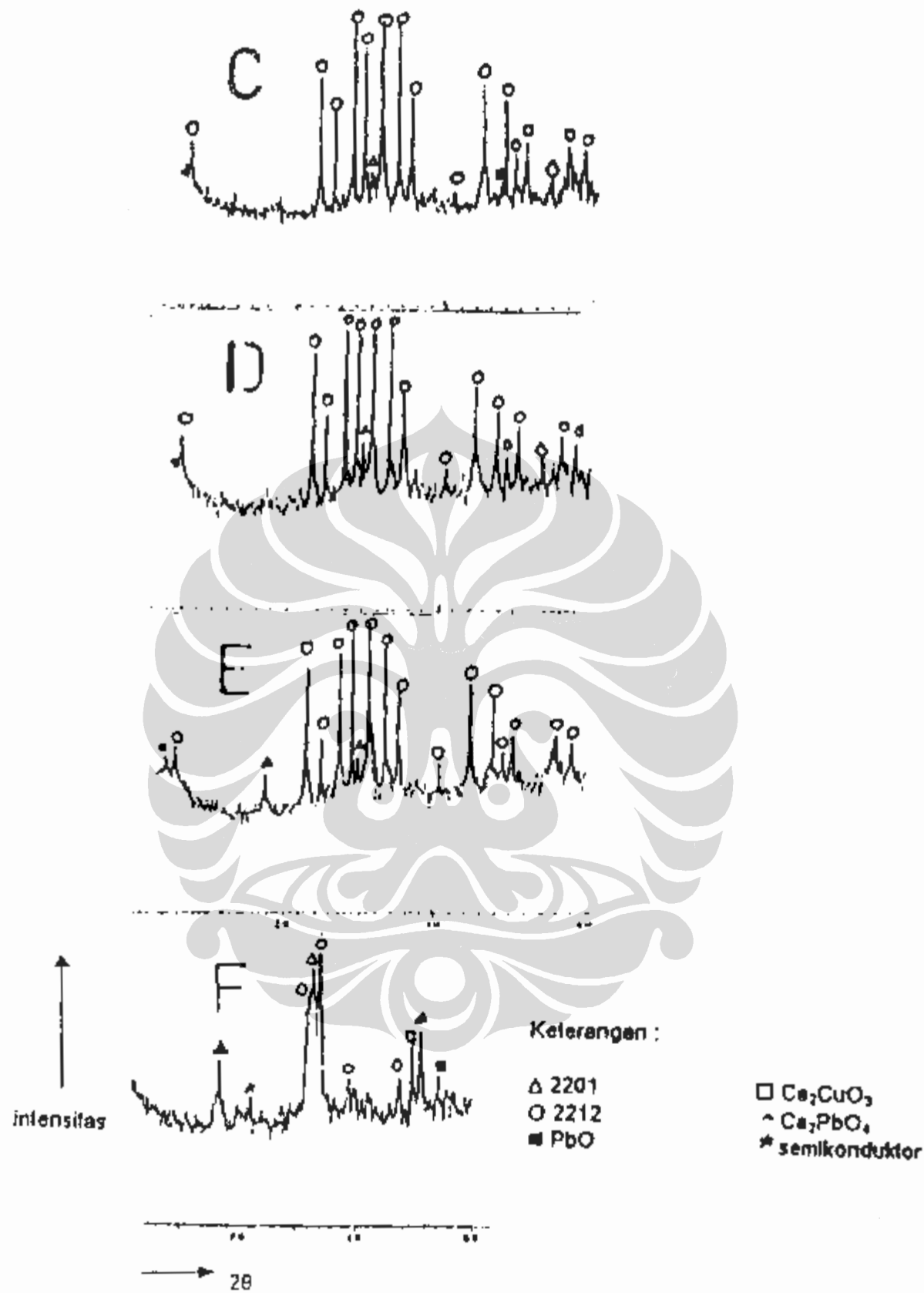
### Hasil XRD

Pada tahap prekursor fase 2212 untuk semua sampel yang disinter pada suhu

$820^\circ\text{C}$  dengan waktu 20 jam, hasil XRD-nya ditampilkan pada gambar 1.

Hasil XRD untuk semua sampel secara keseluruhan belum menunjukkan terbentuknya kristal yang baik. Impuritas fasa 2201 muncul pada semua sampel pada rentang sudut  $2\theta$  antara  $29,535^\circ - 29,660^\circ$ , kecuali pada sampel  $\text{Bi}_{1,8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,5$ ). Meskipun demikian fraksi volume (fv) fase 2212 cukup memadai untuk dicampur dengan bahan pelengkap, kecuali pada sampel  $\text{Bi}_{1,8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,5$ ) yang hanya mempunyai fv 2212 sebesar 27,44%. Kondisi ini disebabkan oleh jumlah doping Pb yang terlalu banyak. Terbukti pada saat kalsinasi dan sintering prekursor 2212, warna sampel  $\text{Bi}_{1,8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,5$ ) ini tetap berwarna abu-abu seperti warna sampel awal sebelum dilakukan kalsinasi dan sintering, bukan hitam pekat seperti warna sampel yang lainnya. Penambahan doping Pb yang terlalu banyak juga dapat dideteksi dengan munculnya impuritas  $\text{Ca}_2\text{PbO}_4$ . Impuritas ini muncul pada sampel  $\text{Bi}_{1,8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,5$ ). Puncak impuritas  $\text{Ca}_2\text{PbO}_4$  tertinggi pada sampel  $\text{Bi}_{1,8}\text{Pb}_{0,5}$ . Impuritas lainnya selain  $\text{Ca}_2\text{PbO}_4$  yang ada pada sampel  $\text{Bi}_{1,8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,5$ ) adalah  $\text{Ca}_2\text{CuO}_3$ ,  $\text{PbO}$ ,  $\text{CuO}$ , semikonduktor dan impuritas lainnya yang tidak diketahui identitasnya. Untuk selanjutnya hanya dilakukan analisa sampel  $\text{Bi}_{1,8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,2; 0,3$  dan  $0,4$ ).

Hasil fv 2212 pada sampel  $\text{Bi}_{1,8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,4$ ) adalah yang terbesar meskipun fasa 2223 mulai nampak pada sudut  $2\theta = 4,220^\circ$  dengan puncak yang hampir sama pada fasa 2212 sudut  $2\theta = 5,540^\circ$ . Secara umum pembentukan prekursor 2212 sangat dipengaruhi oleh pemberian dopan dengan komposisi yang tepat.

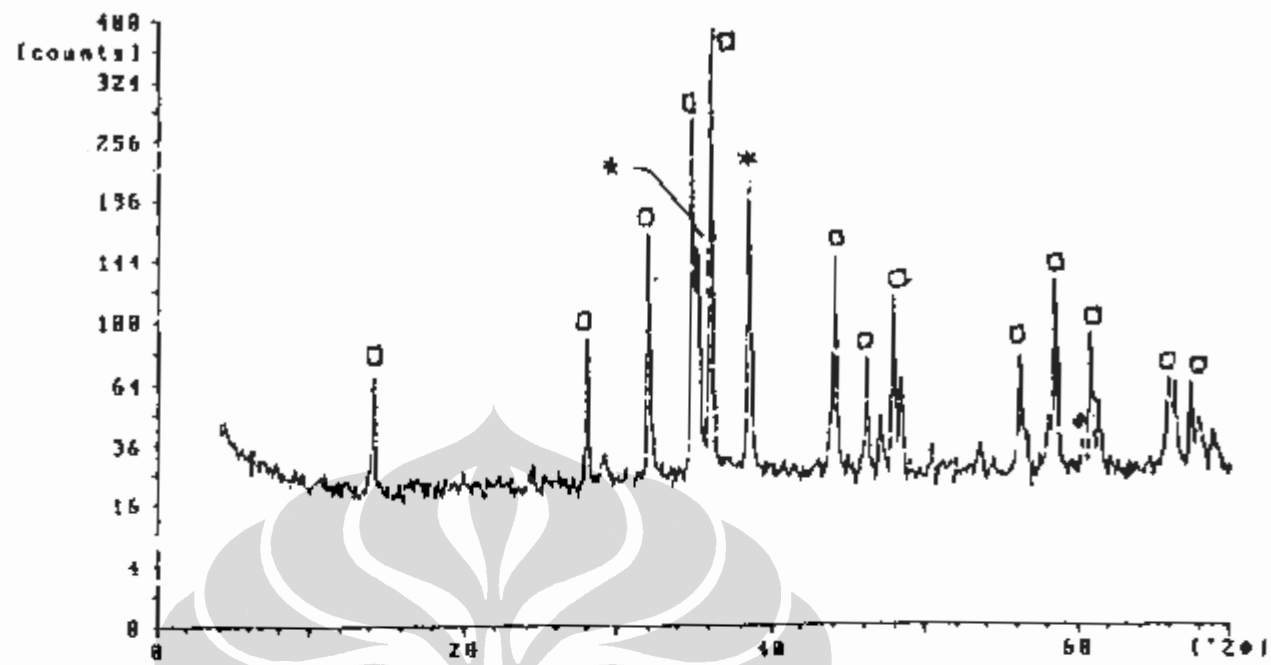


Gambar 1. Hasil XRD prekursor (Bi-Pb)-2212 pada sintering 820<sup>o</sup>C Selama 20jam;

- C= Bi<sub>1,8</sub>Pb<sub>x</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8</sub> (x=0,2);
- D= Bi<sub>1,8</sub>Pb<sub>x</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8</sub> (x=0,3);
- E= Bi<sub>1,8</sub>Pb<sub>x</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8</sub> (x=0,4);
- F= Bi<sub>1,8</sub>Pb<sub>x</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8</sub> (x=0,5)

Hasil XRD untuk senyawa pelengkap ditampilkan pada gambar 2. Fraksi volume untuk senyawa Ca<sub>2</sub>CuO<sub>3</sub> sebesar 93,65%, dinilai telah memenuhi syarat untuk

dicampurkan dengan prekursor 2212. Impuritas CuO muncul pada sudut 2θ = 38,690<sup>o</sup>, sedangkan Cu<sub>2</sub>O pada 61,375<sup>o</sup>.



Gambar 2. Hasil XRD untuk bahan pelengkap  
Keterangan : □  $\text{Ca}_2\text{CuO}_4$  ; ◆  $\text{Cu}_2\text{O}$  ; \*  $\text{CuO}$

Hasil XRD untuk sampel  $\text{Bi}_{1,8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,2; 0,3$  dan  $0,4$ ) dengan sintering pada suhu  $850^\circ\text{C}$  selama 10 jam, 20 jam, 30 jam, 40 jam, 80 jam dan 120 jam ditampilkan pada gambar 3.

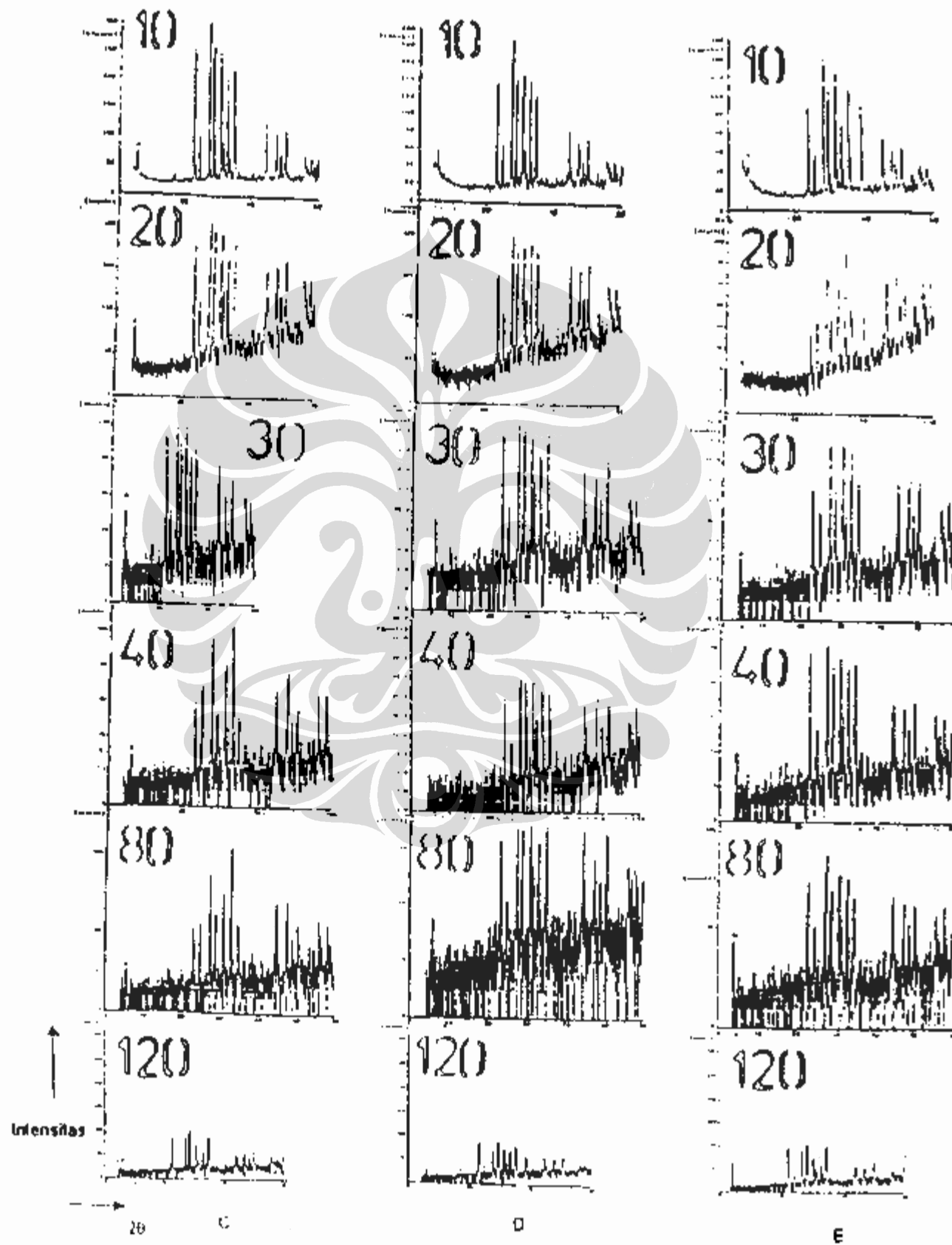
Fraksi volume 2212 pada sampel  $\text{Bi}_{1,8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,2$ ) sampai dengan sintering 120 jam mempunyai harga yang cukup tinggi mencapai 40,55% jadi hampir setara dengan fraksi volume 2223 sebesar 58,19%. Fase impuritas  $\text{Ca}_2\text{PbO}_4$  tidak muncul mulai dari sintering 10 jam sampai dengan sintering 120 jam.

Dalam sampel  $\text{Bi}_{1,8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,3$ ) sampai dengan sintering 120 jam, impuritas yang muncul adalah  $\text{Ca}_2\text{PbO}_4$ ,  $\text{Ca}_2\text{CuO}_4$ ,  $\text{CuO}$  dan  $\text{Bi}_{10}\text{Ca}_7\text{O}_{22}$ . Pada sintering awal 10 jam puncak awal fase 2212 masih lebih tinggi dari pada puncak awal fase 2223. Tetapi pada sintering 20 jam

puncak awal fase 2223 pada sudut  $2\theta = 5,711^\circ$  terlihat sama tinggi dengan puncak awal fase 2212 pada sudut  $2\theta = 4,705^\circ$ . Puncak-puncak yang terbentuk sebagian besar masih berupa amorf. Pada sintering 120 jam, fraksi volume fase impuritas  $\text{Ca}_2\text{PbO}_4$  hanya mencapai 0,66%.

Sampel  $\text{Bi}_{1,8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,4$ ) mempunyai bentuk kristal paling baik bila dibandingkan dengan keempat sampel lainnya. Pada sintering 120 jam fraksi volume 2223 mencapai 92,34% merupakan fraksi volume tertinggi diantar volume sampel lainnya.

Dari penjelasan ketiga sampel di atas terdapat informasi yang cukup menarik untuk dikaji yaitu ketiga sampel mempunyai komposisi nominal Pb masing-masing 0,2, 0,3 dan 0,4. Untuk sampel  $\text{Bi}_{1,8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  dengan  $x=0,2$  dan  $x=0,3$



Gambar 3 Hasil XRD superkonduktor (Bi-Pb)-2223 pada sintering 10 jam, 20 jam, 30 jam, 40 jam, 80 jam dan 120 jam dengan suhu 850 °C  
 C = sampel  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0.2$ )  
 D = sampel  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0.3$ )  
 E = sampel  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0.4$ )

diperkirakan kekurangan Pb sehingga kristal fase 2223 yang terbentuk masih rendah sedangkan fase 2212 masih dominan. Rendahnya kadar Pb ini mengakibatkan tidak terjadinya fase impuritas  $\text{Ca}_2\text{PbO}_2$  untuk waktu sintering yang lama. Berkurangnya Pb ini terjadi selama proses kalsinasi dan sintering sehingga berat sampel mengalami penurunan juga<sup>7</sup>.

Sedangkan untuk sampel  $\text{Bi}_{1,8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,4$ ) ini, mempunyai komposisi Pb yang optimal terbukti sampai dengan sintering 120 jam, fase-fase impuritas sudah tidak muncul lagi kecuali fase 2212 yang semakin berkurang dan mempunyai harga fraksi volume 2223 paling tinggi.

Kesimpulan yang dapat diambil baik untuk sampel yang kekurangan, kelebihan dan optimal doping Pb untuk kesemuanya bahwa lama waktu sintering akan menaikkan fraksi volume fase 2223.

### Pengukuran Suhu Kritis $T_c$

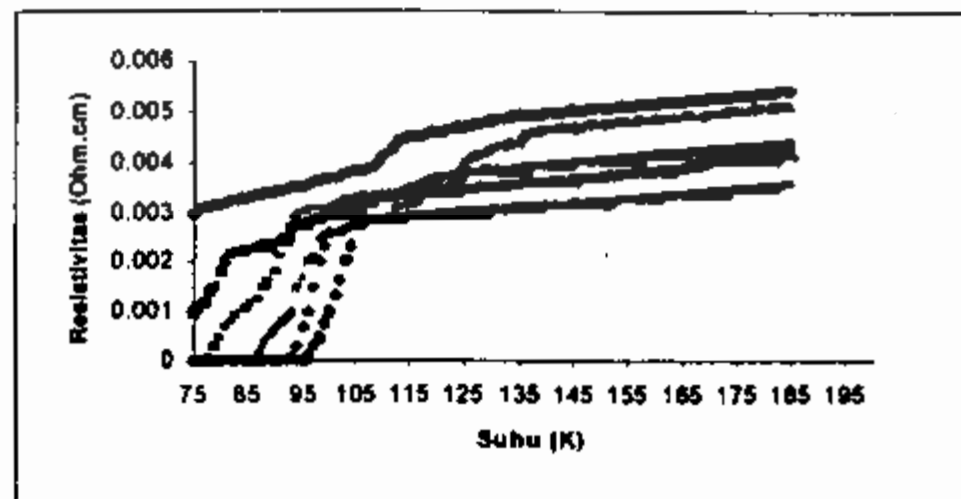
Pengukuran suhu kritis dilakukan pada semua sampel saat fase 2223 untuk waktu sintering 10 jam, 20 jam, 30 jam, 40 jam, 80 jam dan 120 jam dengan suhu  $850^\circ\text{C}$ . Data yang diambil dari pengukuran adalah tegangan sebagai fungsi suhu. Arus diset konstan dan jarak antar probe dapat diukur langsung sehingga hubungan suhu  $T$  dengan resistivitas dapat diplot dan suhu kritis ( $T_c$ ) dapat ditentukan baik suhu kritis onset ( $T_{c-on}$ ), suhu kritis nol ( $T_{c-nol}$ ) maupun suhu kritis undak ( $T_{c-step}$ ) yang mencirikan kehadiran fase rendah.

Suhu kritis sampel  $\text{Bi}_{1,x}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,2;0,3;0,4$ ) yang diperoleh dari hasil pengukuran resistivitas terhadap suhu, disajikan pada gambar 4 – gambar 6 dan pada tabel 1- 3. Terlihat masih besarnya selisih antara  $T_{c-on}$  dengan  $T_{c-nol}$  ( $\rho=0$ ) yang menandakan mengalami transisi superkonduktivitas yang tidak terlalu tajam.

Gambar suhu kritis dan tabel pengukurannya sampel  $\text{Bi}_{1,8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,2$ ) dicantumkan pada gambar 4 dan tabel 1.

Tabel 1. Suhu kritis sampel  $\text{Bi}_{1,8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,2$ )

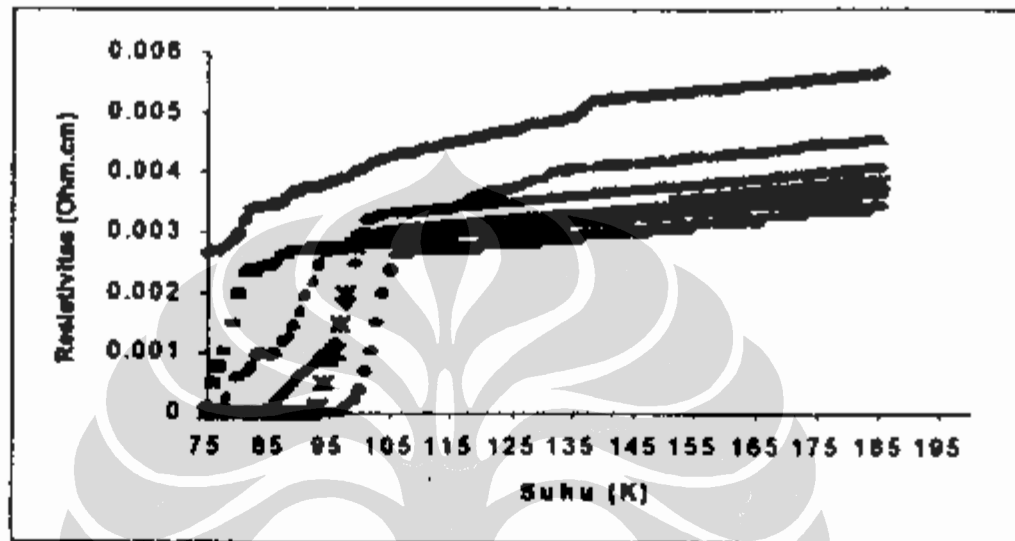
No.	Sintering (jam)	$T_c$ (K)			$\Delta T_c$
		Nol	step	Onset	
1	10	<77	-	112	-
2	20	<77	78	81	6
3	30	<77	84,3	93,5	18,5
4	40	84	90,5	97	13
5	80	91	96,5	102	11
6	120	95	100	105	10



Gambar 4. Suhu kritis sampel  $\text{Bi}_{1,8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,2$ )

Tabel 2. Suhu kritis sampel  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0.3$ )

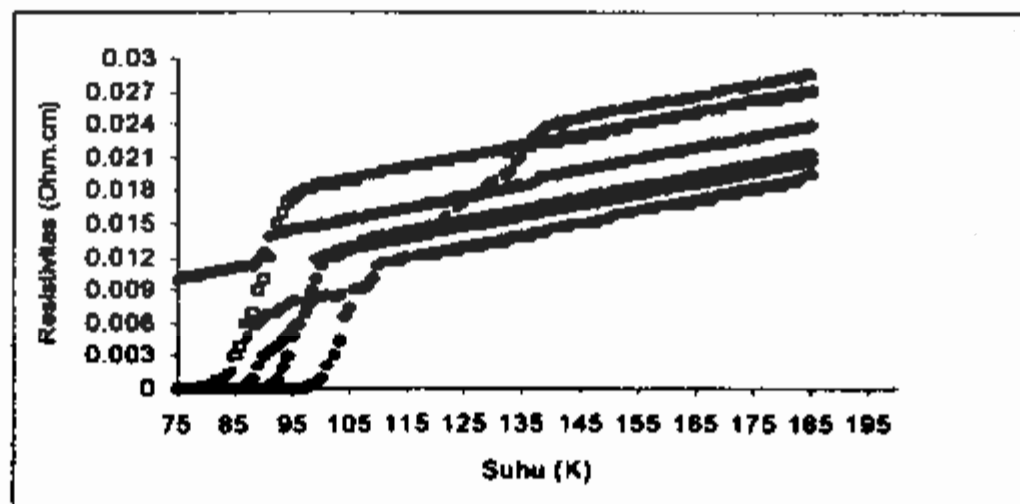
No.	Sintering (jam)	$T_c$ (K)			$\Delta T_c$
		Nol	Step	Onset	
1	10	<77	-	-	-
2	20	<77	78	81	6
3	30	77	82	97	10
4	40	83	91.5	100	17
5	80	92	95	98	6
6	120	94	102	107	10



Gambar 5. Suhu kritis untuk sampel  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0.3$ )

Tabel 3 Suhu kritis sampel  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0.4$ )

No.	Sintering (jam)	$T_c$ (K)			$\Delta T_c$
		Nol	Step	Onset	
1	10	<77	-	91	-
2	20	78	87.5	97	19
3	30	82	88.5	95	13
4	40	83	91.5	100	17
5	80	91	96.5	102	11
6	120	96	103	110	14



Gambar 6 Suhu kritis untuk sampel  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0.4$ )

Dari kelima gambar dan tabel di atas, terlihat bahwa pada sampel  $\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,4$ ) dengan kadar dopan Pb yang optimal, memiliki suhu kritis onset paling besar yaitu 110 K sesuai dengan suhu kritis fase 2223.

### Kesimpulan

Dari hasil penelitian ini dapat ditarik beberapa kesimpulan penting, sebagai berikut :

1. Dari hasil XRD terlihat bahwa fraksi volume terbesar untuk fase 2223 terjadi pada  $\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,4$ ) sebesar 92,34 %. Sampel ini merupakan dopan paling optimum.
2. Suhu kritis tertinggi untuk fase 2223 yang diperoleh adalah 110K, untuk  $\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $x=0,4$ ).

### Ucapan Terima kasih

Ucapan terimakasih penulis kepada KBK Fisika Material ITB, Fisika UI Depok dan ibu Fat atas segala penyediaan bahan dan fasilitas penelitian.

### Daftar Pustaka

1. S.E.Dorri, et.al. *Synthesis of highly pure bismuth-2223 by a two-powder process*: North-Holland : Physica c212.1993 : 66-74.
2. Markus Diantoro. *Studi Kinetika Pembentukan Superkonduktor Sistem  $\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10-x}$ -(2223) Melalui Prekursor Fase (Bi,Pb)-2212*. Tesis S2 KBK Fisika Material, Fakultas Pasca Sarjana ITB, 1997 .
3. Qing-rong, Feng, et.al. *Solid State Communication*, Printed in Great Britain; 1991; vol.78.no.7 pp 609-613.
4. M.Xie, et.al. *Formation and decomposition of a  $\text{Ca}_2\text{PbO}_4$ -modified phase in the  $\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$  compound*; North Holland; Physica C 206 :1993 :251-256.
5. Peter Majewski, et.al. *The Pb solubility of the Bi-based high- $T_c$  superconductors " $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ " and " $\text{Bi}_x\text{Sr}_{2-x}\text{CaCu}_2\text{O}_{10}$ " as a function of temperature* : North-Holland; Physica c221 :1994; 295-298.
6. Grivel, J.C et.al. *Visualization of the formation of the  $(\text{Bi,Pb})_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10-x}$  phase*, Supercond. Sci. Technol. 9;1996: 555-564.
7. J.Hatano, K.Aota, S Ikeda, K Nakamura and K.gawa, *Jpn. J Appl. Phys.*, 27,L : 1998; 2055-2058.