

The Effect of Sintering Time on Surface Morphology of Pb-Doped Bi-2223 Oxides Superconductors Prepared by the Solid State Reaction Methods at 840 °C

Evi Yufita dan Nurmalita*

Laboratorium Fisika Material, Jurusan Fisika, Fakultas MIPA, Universitas Syiah Kuala,
Banda Aceh 23111, Indonesia

Received December, 2015, Accepted January, 2016

This study was investigating the effect of sintering time (30 h, 32 h, and 34 h) on surface morphology of Pb-doped Bi-2223 oxides of superconductors prepared by the solid-state reaction method at 840 °C. The superconductor was characterized by X-Ray Diffraction (XRD) and Scanning Electron Microscopy (SEM). In the present study, phase purity, volume fraction, surface morphology, texturing, crystallinity, grain connectivity and grain size of the bulk samples are found and compared with each other. The enhancement in the sintering time is confirmed that it will decrease Bi-2223 phase fraction and increase the impurity of the samples. SEM images shows that the sample has the best crystallinity, grain connectivity and largest grain size. Based on the present results, it is conclude that the surface morphological is improving with the increasing of the sintering time.

Keywords: Superconductor Bi-2223, metode solid state reaction

Pendahuluan

Superkonduktor $\text{Bi}_{1.4}\text{Pb}_{0.6}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ merupakan keluarga Bi berfasa 2223 yang didopan dengan Pb. Untuk sistem Bi, substitusi sebagian kecil atom Bi oleh atom Pb diketahui berpengaruh positif terhadap meningkatnya kualitas kristal superkonduktor yang terbentuk (Nurmalita, 2012). Beberapa penelitian terbaru pada superkonduktor Bi-2223 dengan dopan Pb telah dilakukan menggunakan metode solid state reaction dan melibatkan unsur dopan tambahan dari elemen lainnya seperti Fe atau Mn. Hasil yang telah dilaporkan ialah dengan penambahan dopan Fe memberikan peningkatan kristalinitas, ukuran butir, dan konektivitas antar butir (O. Ozturk dkk, 2012). Untuk sintesis dengan pemberian dopan Mn telah meningkatkan ukuran butir dan memperkecil ruang kosong antar butir (R. Kumar dkk, 2012). Selain itu, sintesis Bi-2223 yang menggunakan dopan Pb untuk mengsubstitusi Bi dengan perbandingan molar 0.4 juga telah dilakukan melalui metoda *solid state reaction* dan berhasil diperoleh sampel bahan yang mempunyai struktur kristal ortorombik dengan parameter kisi $a = 5.4054 \text{ \AA}$, $b = 5.4111 \text{ \AA}$ dan $c = 37.0642 \text{ \AA}$. Dari foto SEM/EDAX terhadap

morfologi permukaannya didapat informasi komposisi kation rata-rata dalam rasio 2:2:2:3 ditemukan hampir pada tiap titik, dimana pada daerah yang sama juga memperlihatkan mikrostruktur yang sangat seragam yaitu butiran yang terorientasi acak dan porositas rendah yang menunjukkan kompaknya koneksi antar butir kristal (Indu Verma dkk, 2012).

Dalam tulisan ini dilakukan analisis terhadap pola XRD sampel superkonduktor $\text{Bi}_{1.4}\text{Pb}_{0.6}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ yang disintesa menggunakan metode *solid state reaction* dimana sampel pelet disinter pada suhu 840°C dengan perlakuan variasi waktu tahan sinter 30 jam, 32 jam, dan 34 jam. Karakteristik sampel yang terbentuk dianalisis berdasarkan pola XRD, meliputi perhitungan fraksi volume, impuritas, prosentase fasa terorientasi, dan ukuran rata-rata grain. Sedangkan analisa foto SEM untuk mengetahui morfologi permukaan sampel.

Metodologi

Sampel disintesa dengan metode *solid state reaction* menggunakan bahan-bahan awal dengan kemurnian tinggi, yaitu Bi_2O_3 (99.99%), CaCO_3 (99.9%), SrCO_3 (99.9%), dan CuO (99.99%) sebagai

*corresponding Author: nurmalitapatra@unsyiah.ac.id

bahan utama, serta PbO (99.99%), sebagai bahan dopan. Proses sintesis superkonduktor Bi-2223 diawali dengan menimbang bahan-bahan awal berupa serbuk dengan perbandingan kadar massa sesuai rumus kimia $\text{Bi}_{1.4}\text{Pb}_{0.6}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$. Semua bahan dicampur dan selanjutnya dicetak menjadi pelet dengan menggunakan mesin press hidrolik. Selanjutnya pelet dikalsinasi pada suhu 810°C , dan disintering pada suhu 840°C dengan jangka waktu sintering divariasikan (30 jam, 32 jam, dan 34 jam) untuk mengetahui pengaruh parameter tersebut terhadap karakteristik superkonduktor yang dihasilkan. Setiap sampel diberi kode yang mencantumkan perangkat parameter sintesis menurut format: suhu sintering/jangka waktu sintering. Sebagai contoh, sampel dengan kode 840/30 berarti sampel tersebut dibuat pada suhu sintering 840°C selama 30 jam.

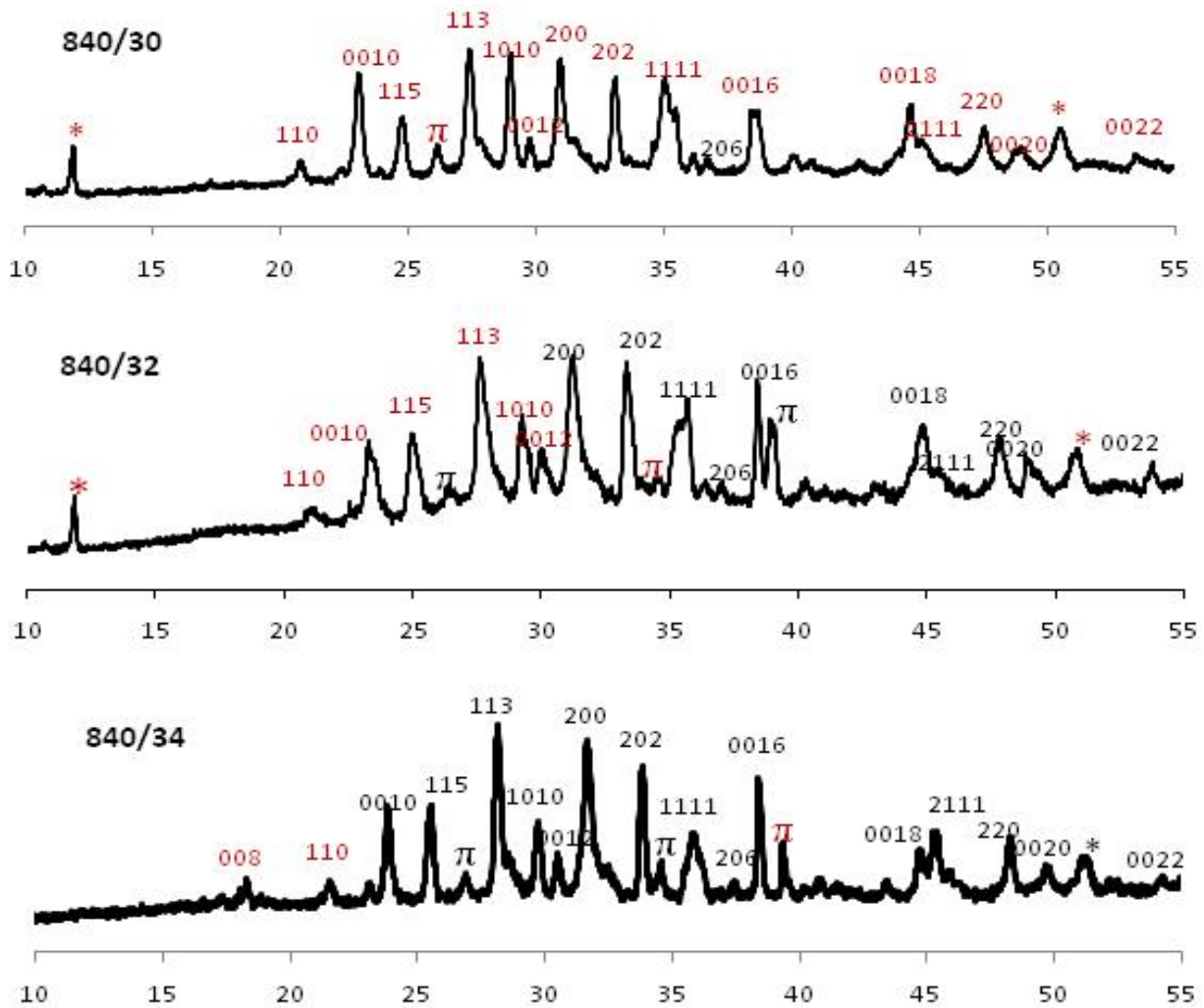
Hasil Dan Pembahasan

Pola XRD semua sampel diperlihatkan pada Gambar 1. Spektrum diukur dari sudut $2\theta = 100$ sampai sudut $2\theta = 550$ menggunakan peralatan XRD dengan sumber CuK yang memiliki panjang gelombang 1.5406 \AA . Dari spektrum XRD yang diperlihatkan dalam Gambar 1 tampak puncak-puncak yang muncul sudah dominan dari fasa Bi-2223, meskipun masih ada sedikit impuritas yang berasal dari fasa Bi-2212 (tanda *), Bi-2201 (tanda \square), dan impuritas lain. Untuk fasa Bi-2223 juga sudah memiliki puncak-puncak dengan pola indeks $hkl = 00l$ dengan l berupa bilangan genap. Dari hasil spektrum tersebut dapat disimpulkan bahwa sebagian fasa Bi-2223 yang terbentuk dalam sampel sudah terorientasi.

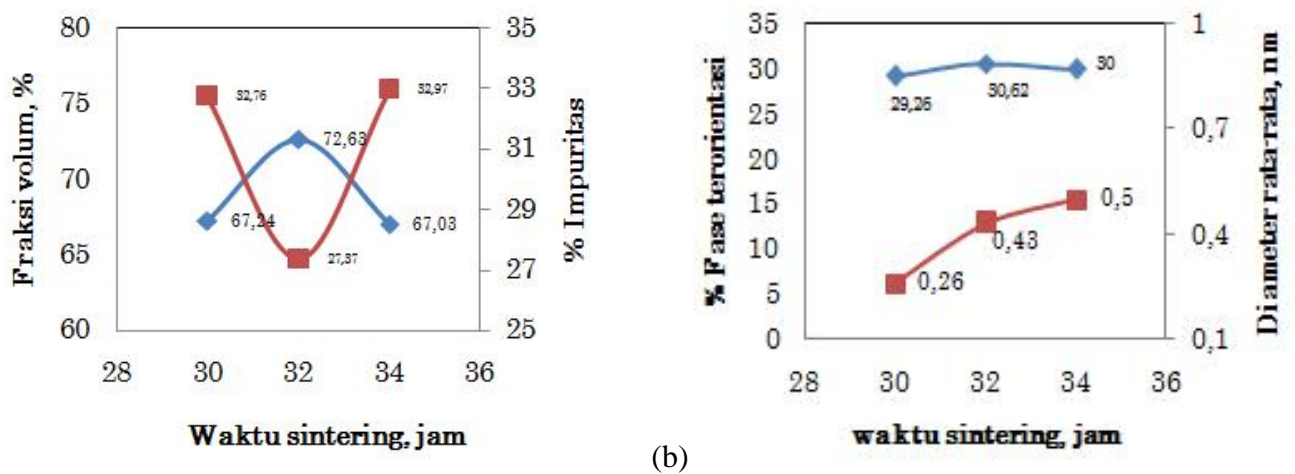
Pola-pola grafik intensitas yang dihasilkan selanjutnya dihitung dan diperoleh karakteristik sampel seperti yang terangkum pada grafik di Gambar 2. Hasil perhitungan fraksi volume 2223 dan prosentasi impuritas ditunjukkan pada Gambar 2(a). Dari hasil tersebut tampak bahwa penambahan waktu sinter sangat berpengaruh pada pembentukan fase 2223. Fraksi volume fasa 2223 terbesar diperoleh pada sampel dengan waktu sinter 32 jam yaitu sebesar 72.63% (Gambar 2(a)). Dengan penambahan waktu sinter dari 30 jam menjadi 32 jam fraksi volume 2223 meningkat. Hal ini bisa dilihat dengan berkurangnya impuritas. Pada waktu

sinter meningkat lagi menjadi 34 jam kristalinitas meningkat yang ditunjukkan oleh membesarnya diameter rata-rata grain tapi fraksi volume 2223 justru menjadi menurun sedangkan impuritas bertambah dan mempunyai nilai terbesar yaitu 32.97%. Hubungan waktu sinter dengan fasa terorientasi ditunjukkan dalam Gambar 2(b).

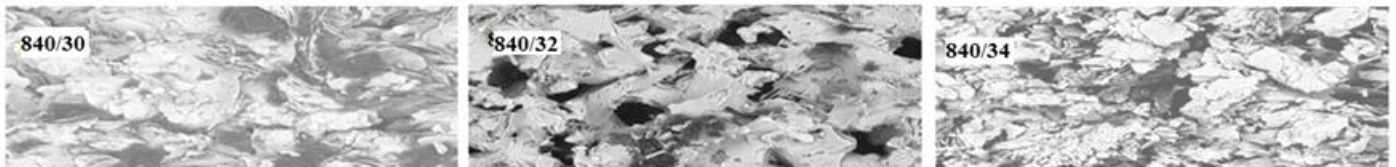
Prosentase fasa terorientasi terbesar yaitu 30.62% diperoleh pada sampel dengan waktu sinter 32 jam, yang juga mempunyai fraksi volume 2223 tertinggi. Hal ini disebabkan fasa 2223 yang terbentuk dengan bidang selain $00l$ pada sampel ini lebih sedikit meskipun ukuran diameter grainnya lebih kecil dibanding sampel yang waktu sinternya pada 34 jam. Sedangkan prosentase fasa terorientasi terendah diperoleh dari sampel dengan waktu sinter 30 jam yaitu sebesar 29.26%. Hasil pengamatan SEM diperlihatkan dalam Gambar 3. Dari hasil SEM tersebut terlihat bahwa untuk semua sampel tekstur butir-butir kristalnya berbentuk seperti lempengan tipis dan pada umumnya terorientasi acak meskipun rata-rata 30% bidang kristalnya sudah terorientasi dalam arah sumbu c. Dari rekaman SEM tersebut tampak bahwa dengan bertambahnya waktu sinter porositas berkurang, yang ditunjukkan dengan menurunnya jumlah lubang yang terdapat di antara butir dan konektivitas antar grain meningkat, dimana lempengan-lempengan tersebut saling merapat satu sama lain membentuk tekstur yang lebih padat. Sampel dengan waktu sinter 32 jam mempunyai prosentase fasa terorientasi terbesar, yaitu fasa yang susunan bidang lempengan-lempengan butirnya sejajar bidang gambar (bidang ab) atau dengan kata lain lempengannya tegak lurus/terorientasi sumbu c kristal, dimana jika pada pola difraksi ditunjukkan oleh puncak-puncak dengan hkl bernilai $00l$ dengan l bilangan bulat dan nampak dari SEM pada sampel ini butir kristalnya lebih terorientasi dibanding sampel lainnya. Untuk sampel ini ukuran butirannya dimana berdasarkan pola XRD juga dapat dihitung yaitu rata-rata diameternya adalah 0.43 nm. Sedangkan sampel dengan waktu sinter 30 jam mempunyai fasa terorientasi paling rendah, terlihat juga dari hasil SEM pada sampel ini orientasinya kurang teratur/acak. Ukuran butiran pada sampel ini rata-rata berkisar 0.26 nm.



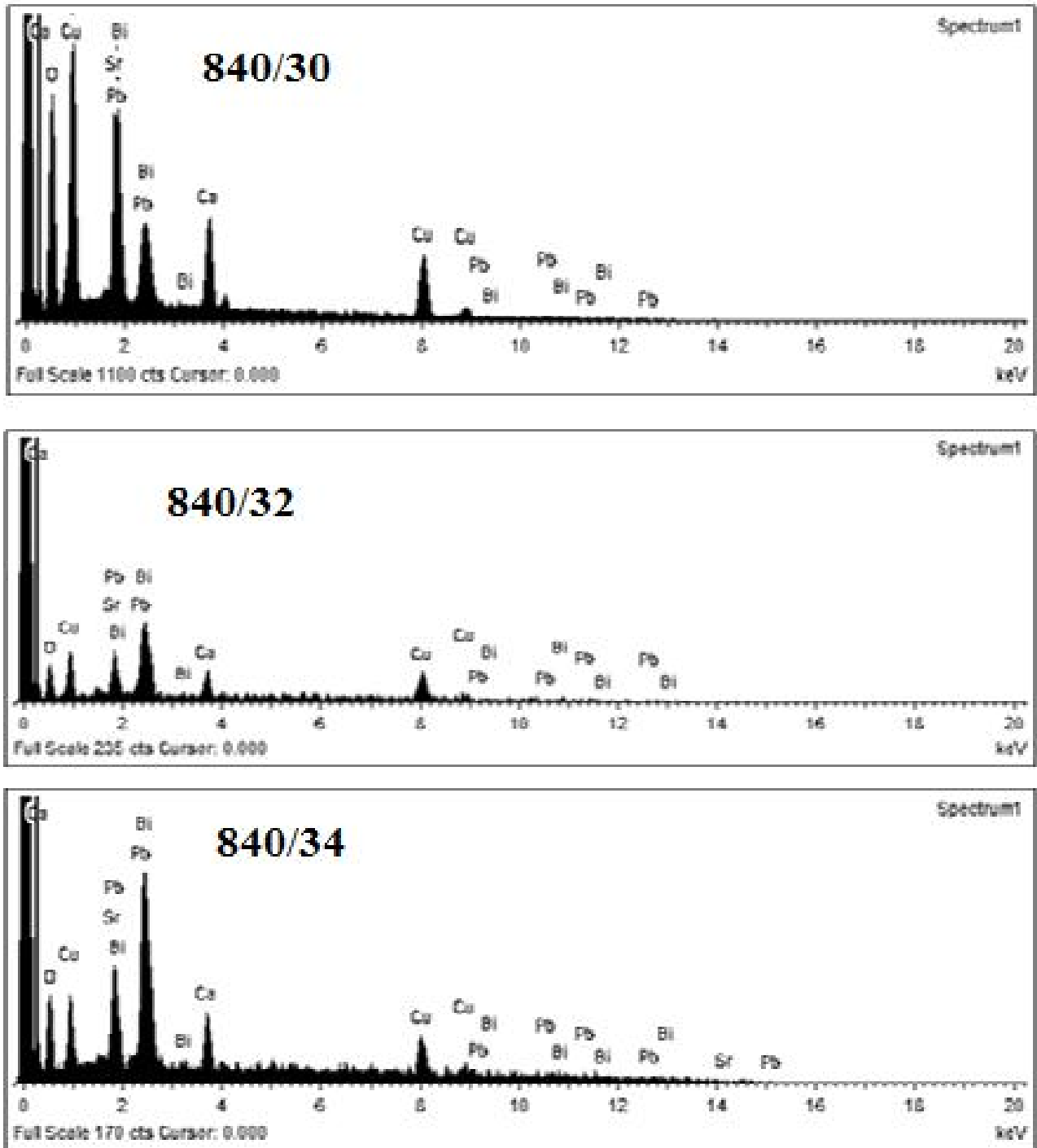
Gambar. 1 Pola XRD sampel dengan suhu sinter 840°C



Gambar 2. (a) Hubungan antara Fraksi volume dan impuritas terhadap waktu sinter (b) Hubungan antara Prosentase fasa terorientasi (P) dan diameter grain (D) terhadap waktu sinter



Gambar 3. Foto SEM sampel dengan suhu sinter 840°C (30, 32, 34 jam)



Gambar 4. Rekaman EDAX sampel dengan suhu sinter 840°C

Berdasarkan rekaman EDAX (Gambar 4) tampak bahwa semua sampel sudah mengandung unsur-unsur kimia seperti yang diharapkan. Jadi dapat disimpulkan bahwa sampel dengan suhu sinter 840°C ini dengan penambahan waktu sinter membuat fraksi volume 2223 yang terbentuk relatif stabil, meskipun ketika waktu sinter ditambah jadi 34 jam membuat impuritas bertambah berupa fasa suhu rendah. Hal ini disebabkan oleh sifat multifase dari bahan superkonduktor berbasis Bi, dimana sangat sulit menghindari hadirnya fasa-fasa yang tak diharapkan selama proses pembentukan Bi-2223. Dipihak lain, penambahan waktu sinter justru membuat kristal semakin tumbuh (*crystal growth*) sehingga ukuran grain dan konektivitas antar grain semakin meningkat, dimana porositas juga makin berkurang sehingga berpeluang untuk meningkatnya nilai rapat arus kritis bahan. Dari hasil yang diperlihatkan oleh sampel-sampel dengan suhu sinter 840°C maka perlakuan panas yang optimum untuk memperoleh senyawa fase Bi-2223 dengan fraksi volume yang cukup besar dan prosentase fasa terorientasi yang cukup baik adalah dengan waktu sinter 32 jam.

Kesimpulan

Peningkatan waktu sinter tidak cukup signifikan untuk mempengaruhi fraksi volume Bi-2223. Harga F_v tertinggi yaitu 72.63% dimiliki sampel dengan waktu sinter 32 jam, sedangkan fraksi volume terendah 67.3% dimiliki oleh sampel dengan waktu sinter 34 jam. Namun dipihak lain, peningkatan waktu sinter mengurangi porositas bahan, meningkatkan konektivitas antar grain, dan kristal yang terbentuk semakin lebih terorientasi sumbu c yang memberikan peluang meningkatnya nilai rapat arus J_c .

Ucapan Terimakasih

Penulis mengucapkan terimakasih kepada Lembaga Penelitian (Lemlit) Universitas Syiah Kuala yang telah mendanai penelitian ini melalui proyek Penelitian Dosen Muda dengan nomor kontrak: 187/UN11/S/LK-PNBP/2013 tanggal 13 Mei 2013. Terimakasih juga disampaikan kepada Dr.Eng. Elin Yusibani, M.Eng atas saran-sarannya yang sangat berharga, serta Jaswadi, S.Si. yang telah ikut membantu terlaksananya penelitian ini.

Daftar Pustaka

- Indu Verma, R. Kumar, V. Ganesan, A. Banerjee, 2012, *Synthesis and Magnetic Properties of (Bi, Pb)₂Sr₂Ca₂Cu₃O₁₀+ Superconductor*, J. Supercond. Nov. Magn. 25:785–789.
- Nurmalita, 2012, *Suhu Kritis superkonduktor Bi_{2-x}Pb_xSr₂CaCu₂O_y*, Jurnal Sains MIPA, Vol. 18, No. 3 83-90, 1978-1873, Universitas Lampung.
- Nurmalita, 2012, *The Effect of Pb Dopant on The Critical Temperature of BSCCO-2212 Superconducting Crystal*, Proceeding of The 2nd Annual International Conference, Banda Aceh Universitas Syiah Kuala.
- O. Ozturk, E. Asikuzun, S. Kaya, M. Coskunyurek, G. Yildirim, M. Yilmazlar, C. Terzioglu, 2012, *Physical Properties and Diffusion-Coefficient Calculation of Iron Diffused Bi-2223 System*, J. Supercond. Nov. Magn. 25:2481–2487.
- R. Kumar, Indu Verma, Nidhi Verma, V.Ganesan, 2012, *Effect of Mn on the Surface Morphological Properties of (Bi, Pb)₂Sr₂Ca₂Cu_{3-x}Mn_xO₁₀+ (Bi-2223) Superconductor*, J. Supercond. Nov. Magn. 25:1215–1221.