

The DC Electrical Resistivity Curves of Bismuth-2212 Ceramic Superconductors: Evaluation of the Hole-Carrier Concentrations per-Cu Ion

Nurmalita*

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

Received March, 2016, Accepted April, 2016

In this study the samples of Bismuth ceramic superconductors were synthesized by the melt textured growth methods from a 2212 stoichiometric composition in order to obtain a large amount of pure Bi-2212. The effects of Pb substitution on the properties of Bi-based $\text{Bi}_{2-x}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ superconductor with $x = 0, 0.2, \text{ and } 0.4$ were investigated by means of DC electrical resistivity measurements. It has been found that the hole-carrier concentrations per-Cu ion of the samples change independently of Pb content.

Keywords : Bi-2212 , Critical Temperature, DC Resistivity

Pendahuluan

Sejak penemuan superkonduktor keramik berbasis Bismuth, yaitu $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_y$ ($n = 1, 2, 3$; dinamakan fasa Bi-2201, Bi-2212 dan Bi-2223) (Akimitsu dkk, 1987) telah banyak dilakukan penelitian untuk meningkatkan sifat-sifat fisika material tersebut. Superkonduktor berbasis Bismuth atau disingkat Bi masih sangat memerlukan penyelidikan lebih lanjut guna mendapatkan teknik sintesis yang lebih mudah, temperatur kritis (T_c) yang tinggi dan stabilitas termodinamik yang semakin baik.

Dalam kelompok material superkonduktor berbasis Bismuth, jenis fasa Bi-2212 mempunyai struktur yang lebih stabil daripada Bi-2223. Bahkan fasa Bi-2212 dapat memiliki nilai rapat arus J_c yang tinggi pada temperatur 77 K. Beberapa penelitian telah dilakukan untuk memahami efek substitusi elemen-elemen tertentu dan metode preparasi terhadap struktur dan sifat kelistrikannya. Untuk fasa Bi-2212 yang didoping Gd diketahui

memperlihatkan ketergantungan temperatur kritis bahan terhadap kandungan doping (H. Aydin dkk, 2009). Penelitian mengenai superkonduktor fase Bi-2212 yang dipreparasi dengan metode *melt textured growth* menunjukkan bahwa dopan Pb mampu meningkatkan sifat struktur bahan, namun dilain pihak telah menurunkan temperatur kritisnya (Nurmalita, 2012). Selanjutnya preparasi fase Bi-2212 yang dilakukan dengan metode *self flux* menunjukkan bahwa waktu sintering juga berpengaruh meningkatkan prosentase fraksi volume dan fasa terorientasi, serta memperkecil fasa impuritas yang terbentuk (Nurmalita dkk, 2013). Dari penelitian-penelitian tersebut diketahui bahwa meningkatnya superkonduktivitas material bergantung pada sifat fisika dopan, kondisi preparasi, perlakuan panas, dan kandungan oksigen dalam bahan.

Superkonduktor berbasis Bismuth merupakan superkonduktor keramik dari sistem senyawa superkonduktor temperatur kritis tinggi (*High T_c Superconductors*) yang memiliki struktur kristal berlapis-lapis

(*multi layers*), terdiri dari lapisan Cu-O₂, lapisan Sr-O, dan lapisan Bi-O, dan susunan yang berfase jamak sebagai akibat senyawa multikomponen. Dalam semua sistem superkonduktor berbasis keramik/oksida logam, maka lapisan Cu-O (kuprat) dalam struktur kristalnya dipercaya sebagai lapisan paling berperan dalam gejala superkonduktivitas. Jumlah lapisan CuO₂ ini bergantung pada stoikiometri dari senyawa yang bersangkutan.

Sama halnya dengan anggota kelompok superkonduktor temperatur kritis tinggi lainnya, maka demikian pula untuk fase Bi-2212 diketahui bahwa pasangan lubang (hole) yang berperan sebagai pembawa muatan (*carriers*). Konsentrasi pembawa muatan umumnya kecil karena hanya bersumber dari dopan. Penelitian tentang efek kandungan dopan Ni dalam bahan Bi-2212 memberikan informasi penurunan konsentrasi hole dengan bertambahnya atom Ni (Berdan Ötzkurt, 2012). Penurunan jumlah pembawa muatan tersebut tentunya mengurangi sifat transpor material, sehingga superkonduktivitas mengecil. Berikut dalam tulisan ini akan dipaparkan bagaimana pengaruh substitusi dopan Pb terhadap sifat superkonduktor berbasis Bi untuk fase n=2, yaitu Bi-2212. Semua sampel disintesa dengan metode *melt textured growth* dan dikarakterisasi dengan pengukuran resistivitas listriknya untuk melihat pengaruh kandungan Pb terhadap konsentrasi hole dalam sampel bahan yang dihasilkan.

Metodologi

Pada kerja sebelumnya (Nurmalita, 2012), sampel polikristal Bi_{2-x}Pb_xSr₂CaCu₂O_y ($x = 0, 0.2, \text{ dan } 0.4$) dibuat dari bahan-bahan awal berupa serbuk Bi₂O₃, SrCO₃, CaCO₃, CuO dan PbO. Semua bahan tersebut ditimbang sesuai stoikiometri Bi_{2-x}Pb_xSr₂CaCu₂O_y ($x = 0, 0.2, \text{ dan } 0.4$) dan dicampur secara manual dalam mortar guna memperoleh

campuran homogen BSCCO-2212. Setelah proses penggerusan, campuran serbuk tersebut dikalsinasi pada temperatur 810°C selama 20 jam untuk memulai pembentukan formasi fase superkonduktif. Setelah kalsinasi, serbuk dipress menjadi bentuk pelet dan disintering sampai meleleh pada temperatur 930°C untuk mendapatkan fase Bi-2212. Sampel-sampel dengan $x = 0, 0.2, \text{ dan } 0.4$ tersebut diberi kode A, B, dan C. Pengukuran resistivitas versus temperatur yang dilakukan terhadap semua sampel menggunakan perlengkapan CTI-Cryogenics yang terdiri dari Cryodine Refrigeration 22/350C dengan daya pendinginan 10 Watt pada cold head, kompresor helium 8200 yang didinginkan dengan air, dan sistem pengukuran R dengan empat elektroda (*four point probe*). Elektroda kontak dibuat sejajar pada permukaan sampel dengan jarak antar elektroda yang serba sama. Seluruh jalur komunikasi data diatur dan dikendalikan dengan PC melalui sambungan GBIB IEEE-488, berdasarkan program *Test Point*.

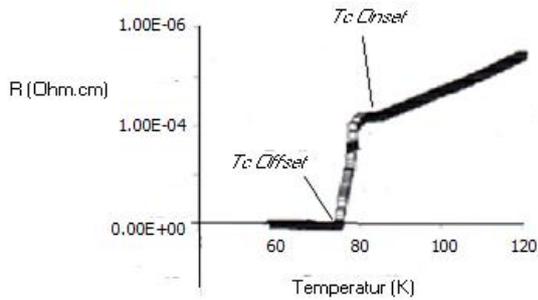
Analisis harga resistivitas sampel dari data yang diperoleh dengan metode pengukuran 4-elektrode tersebut dilakukan dengan rumus :

$$\rho = \frac{2\pi a V}{I}$$

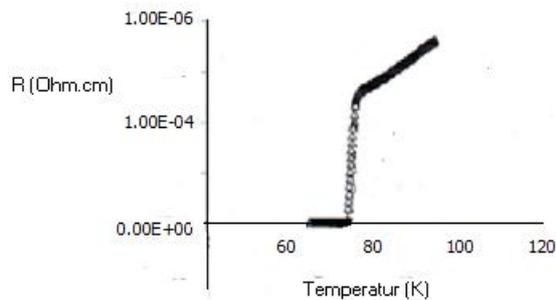
dimana ρ adalah resistivitas sampel (Ohm.cm), V adalah tegangan sampel (volt), I adalah kuat arus yang mengalir (A), dan A adalah jarak antar probe (cm).

Hasil dan Diskusi

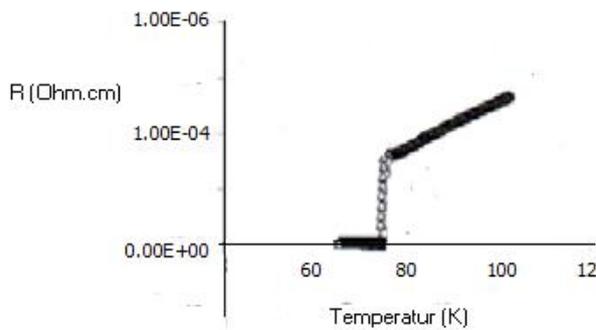
Kurva resistivitas listrik versus temperatur untuk semua sampel diperlihatkan pada Gambar 1-3 berikut ini. Temperatur dimana resistivitas sampel mulai turun secara tajam adalah T_c^{onset} , sedangkan T_c^{offset} merupakan temperatur saat resistivitas di dalam bahan menjadi nol (keadaan superkonduktif).



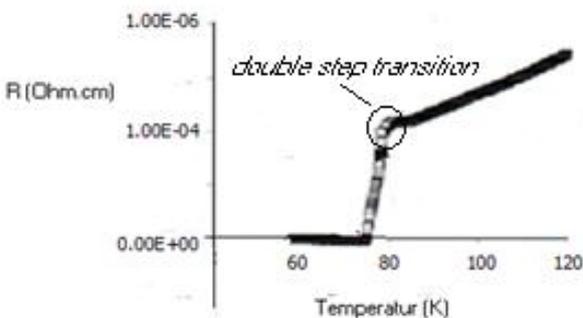
Gambar 1. Kurva resistivitas terhadap temperatur untuk Sampel A



Gambar 2. Kurva resistivitas terhadap temperatur untuk Sampel B



Gambar 3. Kurva resistivitas terhadap temperatur untuk Sampel C



Gambar 4. Transisi dua tahap Sampel A

Tampak pada Gambar 1-3 bahwa semua sampel memperlihatkan sifat metalik pada suhu di atas T_c^{onset} . Keadaan pada temperatur di atas T_c^{onset} merupakan keadaan normal dari sampel bahan. Hal ini merupakan fenomena menarik mengingat bahan Bi-2212 umumnya dikenal sebagai keramik pada keadaan normal. Untuk kurva transisi sampel A (Gambar 4) memperlihatkan telah terjadinya transisi dua tahap (*double step transition*) yang diduga akibat hubungan lemah (*weak links*) antar butir dalam sampel bahan (O. Ozturk dkk, 2012). Temperatur transisi T_c^{onset} untuk sampel A, B, dan C adalah sekitar 78 K, 69 K, dan 68 K (Tabel 1).

Tabel 1. Hasil Pengukuran Resistivitas Sampel

Sampel	Pb content	T_c^{onset} (K)	T_c^{offset} (K)	T_c (K)	R(.cm)
A	0.0	78	74	4	1.1E-06
B	0.2	69	67	2	0.6E-06
C	0.4	68	66	2	1.5E-06

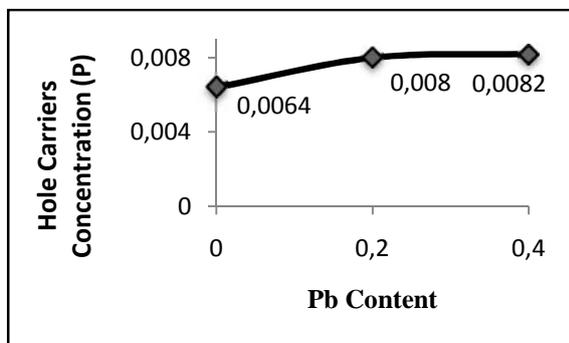
Fenomena sifat metalik semua sampel pada suhu di atas T_c^{onset} yang ditunjukkan oleh grafik transisi bisa disebabkan oleh konektivitas yang rendah antar butir (*grain*), kadar impuritas yang terbentuk dan cacat kisi dari sampel yang didoping (Berdan Ötzkurt, 2012). Selanjutnya terlihat pula bahwa nilai resistivitas pada temperatur di atas T_c^{onset} tidak terlalu signifikan perubahannya dengan bertambahnya kandungan Pb. Namun yang menarik adalah untuk sampel yang diberi doping menunjukkan terjadinya penurunan lebar transisi resistif T_c dibanding sampel tanpa penambahan Pb. Hal ini menunjukkan terjadinya peningkatan kristalinitas bahan akibat substitusi sebagian atom Bi oleh atom Pb.

Dari grafik temperatur transisi maka selanjutnya konsentrasi hole untuk setiap ion Cu yang dikandung sampel, yaitu P ,

dapat dihitung dengan persamaan (Berdan Ötzkurt dkk, 2012) :

$$P = 0.16 + \left[\left(1 - \frac{T_c^{offset}}{T_c^{maks}} \right) / 82.5 \right]^{1/2}$$

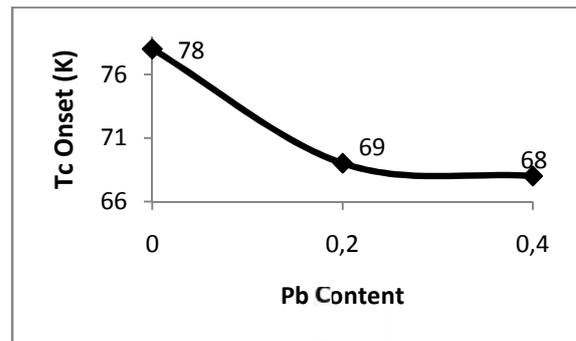
dimana T_c^{maks} adalah 85 K untuk fase Bi-2212 (Bal, S., dkk, 2011) dan harga T_c^{offset} diperoleh dari Tabel 1. Selanjutnya hasil perhitungan berupa variasi nilai konsentrasi hole terhadap kandungan Pb ditampilkan dalam bentuk kurva seperti yang terdapat pada Gambar 5.



Gambar 5. Variasi konsentrasi hole terhadap kandungan Pb

Jumlah hole untuk setiap ion Cu yang terdapat pada lapisan Cu-O mempengaruhi besarnya temperatur kritis transisi bahan. Oleh karena itu, nilai P memainkan peran penting pada bahan superkonduktor temperatur kritis tinggi (*High T_c Superconductor*). Dalam penelitian ini, nilai P untuk sampel terlihat meningkat tajam dengan substitusi Pb dibandingkan sampel tanpa doping. Kecenderungan kenaikan jumlah hole tersebut menunjukkan peningkatan sifat superkonduktif bahan dengan meningkatnya kandungan dopan. Lebih lanjut lagi, perubahan kandungan hole sebagai pembawa muatan yang terdapat pada lapisan superkonduktif tersebut

(lapisan Cu-O₂) menunjukkan telah terjadinya perubahan getaran kekisi kristal (Berdan Ötzkurt dkk, 2012). Sejauh ini untuk bahan superkonduktor diketahui bahwa fonon berperan besar dalam proses pembentukan pasangan Copper (*Copper pairs*) saat bahan dalam keadaan superkonduktif.



Gambar 6. Variasi T_c^{onset} terhadap kandungan Pb

Pada Gambar 6 terlihat nilai temperatur kritis T_c^{onset} sebagai fungsi bertambahnya dopan Pb. Harga temperatur transisi resistivitas-nol untuk sampel A, B, dan C diperoleh berturut-turut 78 K, 69 K, dan 68 K. Temperatur transisi tampak jelas dipengaruhi oleh jumlah dopan Pb dalam bahan. Nilai T_c terendah ditemukan pada sampel C.

Kesimpulan

Telah dipelajari efek doping Pb pada sifat elektronik senyawa Bi-2212. Konsentrasi hole untuk setiap ion Cu dalam sampel bahan bertambah dengan meningkatnya kandungan Pb, sehingga menyebabkan peningkatan sifat superkonduktif dari sampel yang diteliti. Dilain pihak, doping Pb telah menurunkan temperatur transisi kritis dari 78 K menjadi 68 K dibandingkan dengan sampel tanpa doping.

Referensi

Akimitsu, J., Yamazaki, A., Sawa, H., Fujiki, H., (1987), *Superconductivity in The Bi-Sr-Cu-O System*, Japanese J. Appl. Phys. 26 (Part 2, 12), L2080-L2081

H. Aydin, O. Cakiroglu, M. Nursoy, and C. Terzioglu, (2009), *Mechanical and Superconducting Properties of the Bi_{1.8}Pb_{0.35}Sr_{1.9}Ca_{2.1}Cu₃GdxOy System*, Chinese Journal Of Physics, Vol. 47, No. 2, <http://PSROC.phys.ntu.edu.tw/cjp>

Berdan Ötzkurt, (2012), *Effects of Ni Substitution in Bi-2212 Superconductors*, J. Supercond. Nov. Magn., 25:1775-1779, DOI:10.1007/s10948-012-1539-8

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, DOI:10.1007/s10948-012-1673-3

Nurmalita, (2012), *The Effect of Pb Dopant on The Critical Temperature of BSCCO-2212 Superconducting Crystal*,

The 2nd Annual International Conference, Syiah Kuala University Press, ISSN:2089-208X

Nurmalita, Nailul Amani, Fauzi, (2013), *XRD Analysis of Bi-2212 Superconductors : Prepared The Self Flux Methods*, Jurnal Natural, Vol. 13, No.1, pp 23-27, ISSN:1411-8513

Bal, S., Dogruer, M., Yildirim, G., Varilci, A., Terzioglu, C., Zalaoglu, Y.:(2011), *Role of Cerium Addition on Structural and Superconducting Properties of Bi-2212 System*, J. Supercond. Nov. Magn. 25:4, DOI:10.1007/s10948-011-1360-9

Berdan Ötzkurt, M. A. Madre, A. Sotelo, J. C. Diez , (2013), *The effect of Metallic Ag Doping on The Properties of Bi-2212 Ceramic Superconductors*, Journal of Materials Science Materials in Electronics, 24(9), DOI:10.1007/s10854-013-1253-8