



DISERTASI

**SINTESIS, STRUKTUR KRISTAL  
DAN SIFAT MAGNETIK SUPERKONDUKTOR  
 $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (RE = Nd, Eu, Gd)**

WAYAN GEDE SUHARTA  
NRP. 1107301202

PROMOTOR :  
Prof. Dr. SUASMORO  
CO-PROMOTOR :  
Prof. Dr. DARMINTO  
SUMINAR PRATAPA, Ph.D.

PROGRAM DOKTOR  
BIDANG KEAHLIAN FISIKA MATERIAL  
JURUSAN FISIKA  
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM  
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER  
SURABAYA  
2013

## LEMBAR PENGESAHAN

Disertasi disusun untuk memenuhi salah satu syarat memperoleh gelar Doktor (Dr.)

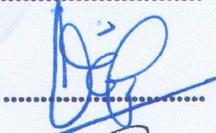
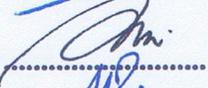
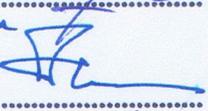
di

Program Doktor Jurusan Fisika  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember

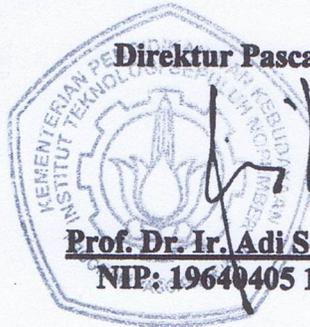
Oleh :

Wayan Gede Suharta  
NRP.1107301202

Disetujui oleh :

- |   |               |   |
|---|---------------|---|
| 1. Prof. Dr. Suasmoro<br>NIP. 195502101980101001                    | (Promotor)    |   |
| 2. Prof. Dr. Darminto<br>NIP. 196003031987011002                    | (Co-Promotor) |  |
| 3. Suminar Pratapa, Ph.D.<br>NIP. 196602241990021001                | (Co-Promotor) |  |
| 4. Prof. Dr.rer.nat. Irmina Kris Murwani<br>NIP. 196412241989032002 | (Penguji)     |  |
| 5. Dr. Z.A. Imam Supardi<br>NIP. 196307071990071001                 | (Penguji)     |  |
| 6. Drs. Abarrul Ikram, M.Sc., Ph.D.<br>NIP. 196002161985031001      | (Penguji)     |  |

Direktur Pascasarjana ITS,



Prof. Dr. Ir. Adi Soeprijanto, M.T  
NIP: 19640405 199002.1.001

# SYNTHESIS, CRYSTAL STRUCTURE AND MAGNETIC PROPERTIES OF $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (RE = Nd, Eu, Gd) SUPERCONDUCTORS

Name : Wayan Gede Suharta  
Registration Number : 1107301202  
Promotor : Prof. Dr. Suasmoro  
Co-Promotor : Prof. Dr. Darminto  
: Suminar Pratapa, Ph.D.

## ABSTRACT

$\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (Nd-123),  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}$ -123) and  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (RE-123) superconductors have been successfully synthesized by means of wet-mixing method and  $\text{HNO}_3$  as digest agent. Nd-123 samples were calcined at  $600^\circ\text{C}$  for 3 hours, cooled and re-grounded. Characterization results of X-ray diffraction (XRD) for Nd-123 samples ( $600^\circ\text{C}$ ) show impurity phase of  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ ,  $\text{BaCO}_3$ ,  $\text{Nd}_2\text{O}_3$ ,  $\text{CuO}$ ,  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$ ,  $\text{Nd}_2\text{BaO}_4$ ,  $(\text{Nd}_{0,925}\text{Ba}_{0,075})_2\text{CuO}_{4-x}$ , and  $\text{Nd}_{1,5}\text{Ba}_{1,5}\text{Cu}_3\text{O}_{7,03}$ , while the Nd-123 phase itself has not been detected at all. The addition of re-calcination temperatures ( $650$ - $970^\circ\text{C}$ ) was applied to eliminate impurities and to grow the Nd-123 phase, in order to obtain an increase in the weight fraction of Nd-123 (84.3 to 95.9 %) phase. Based on these results,  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}$ -123 and RE-123 samples were calcined at  $600^\circ\text{C}$  for 3 hours, cooled and re-grounded, then followed by re-calcination temperature at  $970^\circ\text{C}$  for ten hours. Weight fractions obtained in  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}$ -123 samples were 96.6 to 97.0 %, while they were approximately 96.9 to 98.8 % in the RE-123 samples. Characterization of high-resolution neutron powder diffraction (HRPD) and synchrotron-ray diffraction (SRD) were conducted for the Rietveld analysis with Rietica and FullProf programs. Rietveld analysis results for  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}$ -123 samples showed that the addition of Nd element ( $x = 0$ -1) resulting in increased values of lattice parameters, unit cell volume and orthorhombicity, with the order from the smallest to the largest, namely Y-123,  $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}$ -123,  $\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}$ -123,  $\text{Nd}_{0,75}\text{Y}_{0,25}$ -123 and Nd-123. The addition of Nd element on  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}$ -123 superconductors also resulted in the migration of oxygen as shown by reduced oxygen occupancy factor at the position of O(4). Rietveld analysis results of  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , showed that the combination of RE resulted in changing the values of the lattice parameters and the unit cell volume, with the order from the smallest to the largest, ie Gd-123,  $\text{Eu}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}$ -123, Eu-123,  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ,  $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}$ -123,  $\text{Nd}_{0,5}\text{Eu}_{0,5}$ -123 and Nd-123. Characterization using scanning electron microscopy (SEM) and transmission electron microscopy (TEM) showed that the addition of re-calcination temperatures resulted in larger particle sizes. Characterization results from superconducting quantum interference device (SQUID) measurements showed that resistance of superconducting property in a magnetic field of  $\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  samples is greater than that of  $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  samples. Characterization results from vibrating sample magnetometer (VSM) for  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  samples with particle sizes smaller than 50 nm exhibit ferromagnetic properties at room temperature, while the sample with particle sizes larger than 100 nm shows paramagnetic properties. The addition of Nd element

from  $x = 0,25$  to become  $x = 0,5$  in  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$  samples has increased the critical temperature  $T_c$  (from 90,5 to 91,5 K) and the critical current density  $J_c$  (from  $4 \times 10^4 \text{ Acm}^{-2}$  to  $1 \times 10^5 \text{ Acm}^{-2}$ ). The critical temperature of  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-8}$  samples are in the range of 88,5 and 93,6 K.

Keywords : Superconductor, wet-mixing method, re-calcination, ferromagnetic, XRD, SRD, HRPD, SQUID, critical temperature, critical current density

## KATA PENGANTAR

Puji syukur penulis panjatkan atas segala limpahan rahmat dan karunia Tuhan Yang Maha Esa, sehingga penulis dapat menyelesaikan disertasi dengan judul **“Sintesis, Struktur Kristal dan Sifat Magnetik Superkonduktor  $REBa_2Cu_3O_{7-x}$  ( $RE=Nd, Eu, Gd$ )”**. Disertasi ini merupakan salah satu persyaratan untuk menyelesaikan program doktor pada Jurusan Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS) Surabaya.

Penyelesaian program doktor ini tidak terlepas dari bantuan baik materiil maupun non materiil. Oleh karena itu pada kesempatan ini, penulis menyampaikan penghargaan dan terima kasih kepada:

1. Bapak Prof. Dr. Suasmoro, sebagai Promotor yang telah membimbing dan mengarahkan penulis dalam menyelesaikan disertasi ini.
2. Bapak Prof. Dr. Darminto, sebagai co-Promotor yang telah membimbing dan mengarahkan penulis dalam menyelesaikan disertasi ini.
3. Bapak Suminar Pratapa, Ph.D., sebagai co-Promotor yang telah membimbing dan mengarahkan penulis dalam menyelesaikan disertasi ini.
4. Ibu Prof. Dr. rer. nat. Irminda Kris Murwani, M.Si., sebagai penguji yang telah membimbing dan mengarahkan penulis dalam menyelesaikan disertasi ini.
5. Bapak Dr. Z.A. Imam Supardi, sebagai penguji yang telah memberikan kritik dan saran sehingga disertasi ini menjadi lebih sempurna.
6. Bapak Drs. Abarrul Ikram, M.Sc., Ph.D., sebagai penguji yang telah memberikan kritik dan saran sehingga disertasi ini menjadi lebih sempurna.
7. Kementerian Pendidikan Nasional RI, yang sudah memberikan beasiswa BPPS.
8. Bapak Rektor ITS yang berkenan menerima penulis sebagai mahasiswa pada program doktor dengan segala fasilitas yang diberikan.
9. Bapak Rektor Universitas Udayana yang memberikan tugas belajar kepada penulis untuk melanjutkan program doctor di ITS.
10. Bapak Dr. Mashuri, yang telah membantu, memberikan semangat dan dorongan kepada penulis dalam menyelesaikan disertasi ini.

11. Bapak Ketua Jurusan Fisika ITS beserta Staf, yang telah memberikan pelayanan administrasi dengan baik.
12. Bapak Ka. Prodi Fisika Pasca ITS beserta Staf, yang telah memberikan pelayanan administrasi dengan baik.
13. Teman-teman mahasiswa S3, S2 dan S1, yang telah membantu dan memberikan semangat kepada penulis.
14. Teristimewa buat ayahanda, ibunda, istri, anak-anak tercinta yang telah memberikan semangat, dorongan dan doa.
15. Serta semua pihak yang telah membantu, yang tidak bisa penulis sebutkan satu-persatu.

Terima kasih penulis haturkan, semoga Tuhan Yang Maha Esa senantiasa memberikan rahmat dan karunianya kepada kita semua.

Semoga disertasi ini bisa memberikan manfaat kepada kita semua, dan pengembangan Sains dan Teknologi.

Surabaya, Nopember 2013

Penulis,

Wayan Gede Suharta

## DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1. Kurva hubungan resistivitas terhadap suhu dari bahan konduktor (Cu) dan superkonduktor (Hg) (A.K. Saxena 2010) .....	6
Gambar 2.2. a. Interaksi elektron-elektron .....	8
b. Pasangan yang dimediasi oleh fonon (A.K. Saxena 2010) .....	8
Gambar 2.3. a. Fluks magnetik menembus bahan superkonduktor berbentuk bola pada $T > T_c$ .....	9
b. Fluks magnetik ditolak bahan superkonduktor berbentuk bola pada $T < T_c$ .....	9
Gambar 2.4. Panjang koherensi $\xi$ pada pasangan <i>cooper</i> (A.K. Saxena) .....	10
Gambar 2.5. a. Kurva medan magnetik terhadap magnetisasi superkonduktor tipe I .....	12
b. Kurva medan magnetik terhadap magnetisasi superkonduktor tipe II (A.K. Saxena 2010) .....	12
Gambar 2.6. a. Kurva medan magnetik kritis terhadap suhu kritis pada superkonduktor tipe I .....	12
b. Kurva hubungan magnetik kritis terhadap suhu kritis pada superkonduktor tipe II (A.K. Saxena 2010) .....	12
Gambar 2.7. Struktur <i>Perovskite</i> $ABX_3$ (T. Chatterji 2006) .....	14
Gambar 2.8. Struktur kristal senyawa $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ atau $REBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ .....	15
Gambar 2.9. Skema struktur antiferomagnetik $YBa_2Cu_3O_6$ (T. Chatterji 2006) ..	16
Gambar 2.10. Variasi suhu puncak magnetik ( $\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2}$ ) atau (111) dalam indeks sel (T. Chatterji 2006) .....	18
Gambar 2.11. Skema percobaan hamburan neutron (K. Skold 1986) .....	21
Gambar 3.1. Diagram alir proses sintesis superkonduktor $REBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (RE = Nd, Eu, Gd) .....	29
Gambar 3.2. Termogram sampel $NdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ .....	32
Gambar 3.3. Termogram sampel $GdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ .....	32
Gambar 3.4. Pola difraksi sinar-X ( <i>CuK<math>\alpha</math> radiation</i> ) sampel Nd-123 dengan proses <i>mixing</i> selama 30 menit dan suhu kalsinasi 600°C selama 3	

jam. Ket : (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : ▲ ( Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>), ■ (CuO), ● (Nd<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub>), ♥ (BaCO<sub>3</sub>), □ (BaNd<sub>2</sub>O<sub>4</sub>), Δ (BaCuO<sub>2</sub>), ⊙ (Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), \* ((Nd<sub>0,925</sub>Ba<sub>0,075</sub>)<sub>2</sub>CuO<sub>4-x</sub>) ..... 36

Gambar 3.5. Pola difraksi sinar-X (*CuKα radiation*) sampel Nd-123 yang disintesis melalui proses *mixing* selama 30 menit dan variasi suhu re-kalsinasi selama 1 jam. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : ○ (Nd-123) ..... 38

Gambar 3.6. Fasa impuritas pada sampel Nd-123 yang disintesis melalui proses *mixing* selama 30 menit dan variasi suhu re-kalsinasi selama 1 jam pada sudut 2θ dari 22 sampai 31°. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : ○ (Nd-123), ♥ (BaCO<sub>3</sub>), Δ (BaCuO<sub>2</sub>), □ (BaNd<sub>2</sub>O<sub>4</sub>), ◇ (Nd<sub>2</sub>BaCuO<sub>5</sub>), ● (Nd<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub>) ..... 39

Gambar 3.7. Fasa impuritas pada sampel Nd-123 yang disintesis melalui proses *mixing* selama 30 menit dan variasi suhu re-kalsinasi selama 1 jam pada sudut 2θ dari 32 sampai 60°. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : ○ (Nd-123), ♥ (BaCO<sub>3</sub>), ■ (CuO), ● (Nd<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub>) ..... 39

Gambar 3.8. Diagram fasa pembentukan fasa Y-123 ..... 43

Gambar 3.9. Pola difraksi sinar-X (*CuKα radiation*) sampel NdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> dengan variasi suhu re-kalsinasi. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : ○ (NdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>) ..... 44

Gambar 3.10. Pola difraksi sinar-X (*CuKα radiation*) sampel Nd<sub>0,5</sub>Gd<sub>0,5</sub>-123 dengan variasi suhu re-kalsinasi. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : ○ (Nd<sub>0,5</sub>Gd<sub>0,5</sub>-123) ..... 45

Gambar 3.11. Pola difraksi XRD (*CuKα radiation*) sampel Nd<sub>0,33</sub>Eu<sub>0,33</sub>Gd<sub>0,33</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> dengan variasi suhu re-kalsinasi. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : ○ Nd<sub>0,33</sub>Eu<sub>0,33</sub>Gd<sub>0,33</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> ..... 46

Gambar 3.12. Fasa impuritas pada sampel Nd-123 pada sudut 2θ dari 20 sampai 32°. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : ○ (Nd-123), Δ (BaCuO<sub>2</sub>), □ (BaNd<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) ..... 47

Gambar 3.13. Fasa impuritas pada sampel $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{-123}$ pada sudut $2\theta$ dari 20 sampai $32^\circ$ . Ket: (a.u.) = <i>arbitrary unit</i> . Simbol : o ( $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{-123}$ ), $\Delta$ ( $\text{BaCuO}_2$ ), $\square$ ( $\text{BaNd}_2\text{O}_4$ ) .....	47
Gambar 3.14. Fasa impuritas pada sampel $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ pada sudut $2\theta$ dari 20 sampai $32^\circ$ . Ket: (a.u.) = <i>arbitrary unit</i> . Simbol : o ( $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ), $\Delta$ ( $\text{BaCuO}_2$ ), $\square$ ( $\text{BaNd}_2\text{O}_4$ ) .....	48
Gambar 3.15. Pola difraksi sinar-X ( <i>CuK<math>\alpha</math> radiation</i> ) sampel $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$ ( $x=0, 0,25, 0,5, 0,75, 1$ ). Ket: (a.u.) = <i>arbitrary unit</i> . Simbol : o ( $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$ ) .....	50
Gambar 3.16. Fasa impuritas pada sampel $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$ pada sudut $2\theta$ dari 22 sampai $31^\circ$ . Ket: (a.u.) = <i>arbitrary unit</i> . Simbol : o ( $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$ ), $\Delta$ ( $\text{BaCuO}_2$ ), $\square$ ( $\text{BaNd}_2\text{O}_4$ ) .....	52
Gambar 3.17. Pola difraksi sinar-X ( <i>CuK<math>\alpha</math> radiation</i> ) sampel RE-123 dengan satu, dua dan tiga kombinasi RE. Ket: (a.u.) = <i>arbitrary unit</i> . Simbol : o (RE-123) .....	54
Gambar 3.18. Fasa impuritas pada sampel RE-123 di daerah sudut antara 22 dan $31^\circ$ . Ket: (a.u.) = <i>arbitrary unit</i> . Simbol : o (RE-123), $\Delta$ ( $\text{BaCuO}_2$ ), $\square$ ( $\text{BaNd}_2\text{O}_4$ ) .....	55
Gambar 3.19. Pola difraksi sinar-X ( <i>CuK<math>\alpha</math> radiation</i> ) sampel $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ yang disintesis dengan proses <i>mixing</i> selama 24 jam dan variasi suhu re-kalsinasi ( $750\text{-}900^\circ\text{C}$ ) selama 30 menit. Ket: (a.u.) = <i>arbitrary unit</i> . Simbol : o ( $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ) .....	57
Gambar 3.20. Fasa impuritas pada sampel $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ yang disintesis dengan proses <i>mixing</i> selama 24 jam dan variasi suhu re-kalsinasi ( $750\text{-}900^\circ\text{C}$ ) selama 30 menit pada sudut $22\text{-}31^\circ$ . Ket: (a.u.) = <i>arbitrary unit</i> . Simbol : o ( $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ), $\heartsuit$ ( $\text{BaCO}_3$ ), $\Delta$ ( $\text{BaCuO}_2$ ), $\square$ ( $\text{BaNd}_2\text{O}_4$ ) .....	58
Gambar 3.21. Morfologi TEM sampel Nd-123 dengan suhu re-kalsinasi : (a) $700^\circ\text{C}$ , (b) $750^\circ\text{C}$ , (c) $800^\circ\text{C}$ dan (d) $900^\circ\text{C}$ .....	60

Gambar 3.22. Gambar SEM sampel $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ dengan suhu re-kalsinasi pada : (a) $920^\circ\text{C}$ , (b) $940^\circ\text{C}$ , (c) $970^\circ\text{C}$ .....	61
Gambar 3.23. Morfologi SEM sampel $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$ , $x =$ a) 0, b) 0,25, c) 0,5, d) 0,75, e) 1 .....	63
Gambar 3.24. Morfologi TEM sampel $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ dengan suhu re-kalsinasi : (a) $750^\circ\text{C}$ , (b) $800^\circ\text{C}$ dan (c) $900^\circ\text{C}$ .....	65
Gambar 4.1. Pola difraksi sinar-X ( <i>CuK<math>\alpha</math> radiation</i> ) superkonduktor $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$ ( $x=0, 0,25, 0,5, 0,75, 1$ ) dengan $T_{\text{rc}}$ $970^\circ\text{C}$ selama 10 jam. Simbol : (o) $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$ . Ket: (a.u.) = <i>arbitrary unit</i> .....	68
Gambar 4.2. Pola difraksi neutron (HRPD) dengan panjang gelombang $\lambda = 1,819479 \text{ \AA}$ untuk sampel superkonduktor $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ( $x=0, 0,25, 0,5, 0,75, 1$ ) dengan $T_{\text{rc}}$ $970^\circ\text{C}$ selama 10 jam. Ket: (a.u.) = <i>arbitrary unit</i> .....	69
Gambar 4.3. Pergeseran sudut puncak difraksi sinar-X dengan indeks Miller (013) dan (103) hasil karakterisasi XRD (Gambar 4.1). Ket: (a.u.) = <i>arbitrary unit</i> .....	71
Gambar 4.4. Pergeseran sudut puncak difraksi dengan indeks Miller (013) dan (103) hasil karakterisasi HRPD (Gambar 4.2). Ket: (a.u.) = <i>arbitrary unit</i> .....	71
Gambar 4.5. Pola XRD ( <i>CuK<math>\alpha</math> radiation</i> ) sampel RE-123 dengan satu, dua dan tiga kombinasi RE. Ket: (a.u.) = <i>arbitrary unit</i> .....	73
Gambar 4.6. Pola difraktogram <i>synchrotron-ray diffraction</i> (SRD) sampel RE-123 dengan satu, dua dan tiga kombinasi RE. Ket: (a.u.) = <i>arbitrary unit</i> .....	74
Gambar 4.7. Pergeseran puncak dengan indeks Miller (116), (123) dan (213) hasil karakterisasi XRD untuk sampel RE-123 dengan satu, dua dan tiga kombinasi RE. Ket: (a.u.) = <i>arbitrary unit</i> .....	75
Gambar 4.8. Pergeseran puncak dengan indeks Miller (116), (123) dan (213) hasil karakterisasi SRD untuk sampel RE-123 dengan satu, dua dan tiga kombinasi RE. Ket: (a.u.) = <i>arbitrary unit</i> .....	75

Gambar 4.9. Pola difraksi hasil <i>refinement</i> sampel Nd-123 dari hasil karakterisasi XRD, SRD dan HRPD. Hasil pengamatan, hasil perhitungan, selisih harga intensitas hasil pengamatan dan hasil perhitungan, posisi sudut puncak Bragg, masing-masing ditunjukkan warna hitam, warna merah, warna hijau, warna biru ...	79
Gambar 4.10. Pola perubahan parameter kisi terhadap penambahan suhu rekalsinasi dari 650-970°C untuk sampel Nd-123 .....	85
Gambar 4.11. Pola perubahan parameter kisi terhadap variasi jumlah substitusi Nd pada superkonduktor $Nd_xY_{1-x}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ .....	86
Gambar 4.12. Pola perubahan parameter kisi a, b, dan c terhadap sampel RE-123 dengan satu, dua dan tiga kombinasi RE .....	88
Gambar 4.13. Ortorombisitas terhadap penambahan suhu re-kalsinasi dari 650 sampai 970°C untuk sampel Nd-123 .....	90
Gambar 4.14. Ortorombisitas sampel $Nd_{0,5}Gd_{0,5}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ dan $Nd_{0,33}Eu_{0,33}Gd_{0,33}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ dengan suhu re-kalsinasi dari 920-970°C .....	91
Gambar 4.15. Ortorombisitas sampel superkonduktor $Nd_xY_{1-x}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ ( $x=0-1$ ) .....	92
Gambar 4.16. Faktor hunian ( <i>Occupancy</i> ) oksigen pada posisi O(4) dengan penambahan x dalam sampel $Nd_xY_{1-x}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ setelah penghalusan pola difraksi menggunakan analisis <i>Rietveld</i> untuk data HRPD .....	95
Gambar 4.17. Kurva kandungan oksigen terhadap penambahan x dalam sampel $Nd_xY_{1-x}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ .....	96
Gambar 4.18. Struktur kristal sampel $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ dan $Nd_{0,5}Y_{0,5}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ ....	98
Gambar 4.19. Pergeseran atom-atom dari sampel $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ menjadi sampel $Nd_{0,5}Y_{0,5}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ .....	100
Gambar 5.1. Kurva suseptibilitas terhadap suhu sampel superkonduktor $Nd_{0,5}Gd_{0,5}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ .....	102
Gambar 5.2. Kurva suseptibilitas terhadap suhu antara 85-95 K untuk sampel $Nd_{0,5}Gd_{0,5}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ .....	102

Gambar 5.3. Kurva susceptibilitas terhadap suhu sampel superkonduktor $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .....	103
Gambar 5.4. Kurva susceptibilitas terhadap suhu antara 85-95 K untuk sampel $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .....	103
Gambar 5.5. Kurva susceptibilitas terhadap suhu sampel superkonduktor $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ( $x = 0,25, 0,5$ ) .....	105
Gambar 5.6. Kurva M-H sampel superkonduktor $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ( $x = 0,25, 0,5$ ) .....	107
Gambar 5.7. Kurva rapat arus kritis ( $J_c$ ) terhadap kuat medan magnetik (H) untuk sampel superkonduktor $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ( $x = 0,25, 0,5$ ) pada medan positif .....	108
Gambar 5.8. Kurva rapat arus kritis ( $J_c$ ) terhadap kuat medan magnetik (H) untuk sampel superkonduktor $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ( $x = 0,25, 0,5$ ) : pada medan negatif .....	109
Gambar 5.9. Kurva M-T sampel RE-123 dengan satu kombinasi RE .....	111
Gambar 5.10. Kurva M-T sampel RE-123 dengan dua dan tiga kombinasi RE ..	111
Gambar 5.11. Hasil karakterisasi VSM dari sampel Nd-123 pada suhu re-kalsinasi 750, 800 dan 900°C .....	114
Gambar 5.12. Hasil karakterisasi VSM sampel $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ dengan <i>mixing</i> selama 24 jam dan suhu re-kalsinasi pada 800, 850 dan 900°C selama 30 menit .....	114
Gambar 5.13. Hasil karakterisasi VSM sampel $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ dengan <i>mixing</i> selama 24 jam dan suhu re-kalsinasi pada 750°C ..	115

## DAFTAR NOTASI DAN DAFTAR SINGKATAN

Nd-123	: $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$
Eu-123	: $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$
Gd-123	: $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$
$\text{Nd}_{0.5}\text{Eu}_{0.5}$ -123	: $\text{Nd}_{0.5}\text{Eu}_{0.5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$
$\text{Nd}_{0.5}\text{Gd}_{0.5}$ -123	: $\text{Nd}_{0.5}\text{Gd}_{0.5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$
$\text{Eu}_{0.5}\text{Gd}_{0.5}$ -123	: $\text{Eu}_{0.5}\text{Gd}_{0.5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$
$\text{Nd}_{0.33}\text{Eu}_{0.33}\text{Gd}_{0.33}$ -123	: $\text{Nd}_{0.33}\text{Eu}_{0.33}\text{Gd}_{0.33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$
RE-123	: $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$
$\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}$ -123	: $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$
$\text{Nd}_{0.25}\text{Y}_{0.75}$ -123	: $\text{Nd}_{0.25}\text{Y}_{0.75}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$
$\text{Nd}_{0.5}\text{Y}_{0.5}$ -123	: $\text{Nd}_{0.5}\text{Y}_{0.5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$
$\text{Nd}_{0.75}\text{Y}_{0.25}$ -123	: $\text{Nd}_{0.75}\text{Y}_{0.25}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$
Y-123	: $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$
YBCO	: $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$
RE	: Rare earth
$T_c$	: Suhu kritis
$J_c$	: Rapat arus kritis
$H_c$	: Medan magnetik kritis
$T_{rc}$	: Suhu re-kalsinasi
$t_{rc}$	: Periode re-kalsinasi
a.u.	: Arbitrary unit
XRD	: <i>X-ray Diffraction</i>
HRPD	: <i>High-Resolution Neutron Powder Diffraction</i>
SRD	: <i>Synchrotron-ray Diffraction</i>
SEM	: <i>Scanning Electron Microscopy</i>
TEM	: <i>Transmission Electron Microscopy</i>
VSM	: <i>Vibrating Sample Magnetometer</i>
SQUID	: <i>Superconducting Quantum Interference Device</i>
M	: Magnetisasi
H	: Medan magnetik luar



## DAFTAR TABEL

Tabel 2.1. Sifat dasar dari neutron (T. Chatterji 2006) .....	20
Tabel 3.1. Pengurangan massa sampel $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ dan $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ dari hasil karakterisasi TGA .....	33
Tabel 3.2. Nilai prosentase fraksi berat fasa $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ dan fasa impuritas pada suhu re-kalsinasi 650-900°C .....	41
Tabel 3.3. Nilai prosentase fraksi berat fasa $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ dan fasa impuritas $\text{BaCuO}_2$ pada suhu re-kalsinasi 920-970°C .....	48
Tabel 3.4. Nilai prosentase fraksi berat fasa NY-123 dan fasa impuritas pada suhu re-kalsinasi 970°C .....	52
Tabel 3.5. Nilai prosentase fraksi berat fasa RE-123 dengan variasi unsur tanah jarang dan fasa impuritas pada suhu re-kalsinasi 970°C .....	55
Tabel 4.1. Harga parameter kisi a, b dan c, faktor <i>reliability</i> ( $R_p$ , $R_{wp}$ , $R_e$ , $R_B$ , $R_F$ ) dan <i>goodness-of-fit</i> (S) untuk sampel Nd-123 dengan suhu re-kalsinasi 970°C selama 10 jam yang merupakan hasil karakterisasi XRD, SRD dan HRPD menggunakan <i>software FullProf</i> (Rodriguez 2001) .....	78
Tabel 4.2. Harga parameter kisi hasil <i>refinement</i> untuk sampel Nd-123 ( $T_{rc}=650-970^\circ\text{C}$ ), $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}-123$ ( $T_{rc}=920-970^\circ\text{C}$ ), $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}-123$ ( $T_{rc}=920-970^\circ\text{C}$ ), $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}-123$ ( $T_{rc}=970^\circ\text{C}$ ), RE-123 (kombinasi RE) ( $T_{rc}=970^\circ\text{C}$ ) .....	80
Tabel 4.3. Data kristalografi hasil karakterisasi HRPD untuk $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .....	89
Tabel 4.4. Harga faktor hunian ( <i>occupancy</i> ) hasil karakterisasi HRPD untuk sampel $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ setelah penghalusan puncak difraksi dengan analisis <i>Rietveld</i> menggunakan program <i>FullProf</i> (Rodriguez 2001) .....	90
Table 4.5. Kandungan oksigen sampel superkonduktor $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ...	93
Tabel 4.6. Harga jarak antar atom sampel $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ( $x=0, 0,25, 0,5, 0,75, 1$ ) .....	95

Tabel 4.7. Harga sudut antar atom sampel $Nd_xY_{1-x}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ ( $x=0, 0,25, 0,5, 0,75, 1$ ) .....	96
Tabel 5.1. Harga suhu kritis <i>intergrain and intragrain superconductivity</i> untuk FC dan ZFC dari sampel $Nd_{0,5}Gd_{0,5}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ dan $Nd_{0,33}Eu_{0,33}Gd_{0,33}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ .....	104
Tabel 5.2. Harga suhu kritis <i>intergrain and intragrain superconductivity</i> untuk FC dan Z FC dari sampel $Nd_{0,5}Gd_{0,5}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ dan $Nd_{0,33}Eu_{0,33}Gd_{0,33}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ .....	105
Tabel 5.3. Hasil pengukuran suhu kritis ( $T_c$ ) menggunakan SQUID untuk sampel $REBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ( $RE=Nd, Eu, Gd$ ) dengan satu, dua dan tiga kombinasi unsur tanah jarang ( <i>rare earth</i> ) .....	112
Tabel 5.4. Harga $M_s$ , $M_r$ dan $H_c$ untuk sampel $Nd_{0,33}Eu_{0,33}Gd_{0,33}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ dengan <i>mixing</i> selama 24 jam dan suhu re-kalsinasi pada 750, 800, 850 dan 900°C .....	115

# BAB 1

## PENDAHULUAN

### 1.1. Latar Belakang

Bahan superkonduktor ditemukan oleh Heike Kamerlingh Onnes pada tahun 1911 telah memberikan peluang aplikasi sangat luas yang mengacu pada efisiensi energi serta biaya dalam jangka lama. Beberapa aplikasi bahan superkonduktor meliputi sistem kabel transmisi daya (*transmission cable system*) (L. Rostila 2006; S. Mukoyama 2007; J. Maguire 2009), sistem penyimpanan energi magnetik (*Superconducting Magnetic Energy Storage Systems*) (P. Tixador 2010) dan *magnetic levitation* (efek Meissner).

Bahan superkonduktor diupayakan memiliki suhu kritis ( $T_c$ ), rapat arus kritis ( $J_c$ ) dan medan magnetik kritis ( $H_{c2}$ ) tinggi, sehingga dalam pengaplikasiannya tidak memerlukan biaya tinggi. Salah satu bahan yang mempunyai peluang besar dalam aplikasi adalah superkonduktor sistem YBCO karena mempunyai  $T_c$ ,  $J_c$  dan  $H_{c2}$  tinggi. Superkonduktor sistem YBCO ditemukan oleh Wu dan kawan-kawan (M.K. Wu 1987) mempunyai rumusan stoikiometri  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  (Y-123). Berbagai cara telah dilakukan untuk meningkatkan  $T_c$ ,  $J_c$  dan  $H_{c2}$  superkonduktor YBCO, diantaranya dengan substitusi unsur tanah jarang (*rare-earth element*). Unsur tanah jarang Nd, Eu, Gd, Sm, Pr dan Dy merupakan bahan magnetik, dan diharapkan substitusi maupun penggantian dengan unsur-unsur tersebut dapat memperbesar harga  $T_c$ ,  $J_c$  dan  $H_{c2}$ . Substitusi unsur Y dengan RE mengubah rumus kimia senyawa dari  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  menjadi  $REBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  (RE = Nd, Eu, Gd, Sm, Pr, Dy) atau REBCO (RE-123). Superkonduktor Y-123 dan RE-123 mempunyai struktur kristal ortorombik. Superkonduktor sistem Y-123 mempunyai grup ruang Pmmm (47), dengan parameter kisi a (38214 Å), b (3,8877 Å) dan c (11,693 Å) (N. Wong 1987). Substitusi unsur Y dengan RE, mengakibatkan terjadinya perubahan nilai parameter kisi, dimana parameter kisi RE-123 lebih besar dibandingkan parameter kisi Y-123 yang diakibatkan oleh perbedaan jari-jari ion  $Y^{3+}$  dan  $RE^{3+}$ .

Upaya untuk meningkatkan harga  $T_c$ ,  $J_c$  dan  $H_{c2}$  terus dilakukan baik untuk superkonduktor  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  maupun  $REBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , yaitu dengan substitusi unsur Ag

(C. Cui 1990; Y.L. Jiao 2003; N. Sakai 2005; N. Mori 2006) dan Ce (M.I. Petrov 2007). Substitusi Ag maupun Ce akan mengisi porositas, mengurangi batas butiran, resistivitas keadaan normal dan pengaruh sambungan lemah (*weak-link*).

Berbagai metode dalam proses sintesis superkonduktor Y-123 dan RE-123 juga telah dilakukan untuk meningkatkan harga  $T_c$ ,  $J_c$  dan  $H_{c2}$ , seperti metode reaksi padatan (*solid state reaction*) (S. Suasmoro 2012), metode *top-seeded melt growth* (TSMG) (S. Haindl 2005; N. Hari Babu 2006; Y. Shi 2006), metode pelelehan (*melt-textured*) (N. Sakai 2007; Y. Nakamura 2007) dan metode *oxygen-controlled melt growth* (OCMG) (M. R. Koblishka 2000; J.Q. Dai 2004).

Penelitian mengenai sifat magnetik superkonduktor  $REBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  (RE = Nd, Eu, Gd) dilakukan oleh Koblishka dan kawan-kawan (M. R. Koblishka 2003), penelitian untuk menghasilkan ukuran butiran yang besar dilaporkan oleh K. Ogasawara dan kawan-kawan (K. Ogasawara 2000), sedangkan penelitian *flux pinning* dilakukan oleh M. Muralidhar (M. Muralidhar 2003) dan A. K. Pradhan (A. K. Pradhan 2000).

Penelitian superkonduktor RE-Y-123 dan 123 tidak hanya terbatas pada upaya menghasilkan sampel dengan ukuran partikel besar (skala mikrometer) yang berkaitan dengan peningkatan rapat arus kritis dan medan magnetik kritis, akan tetapi peneliti juga berupaya untuk menghasilkan superkonduktor Y-123 dan RE-123 dengan ukuran partikel dalam skala nanometer. Dalam aplikasinya, magnetik partikel nano digunakan sebagai komponen aktif dari fluida magnetik (*ferrofluids*), pembuatan *tape*, dan dalam aplikasi *biomedical* (R.W. Chantrell 1994; H. Gu 2003). Rao dan kawan-kawan (A. Shipra 2007) telah melaporkan bahwa bahan superkonduktor Y-123 dengan  $T_c$  sekitar 91 K dan ukuran partikel dalam skala nano memperlihatkan sifat feromagnetik pada suhu ruang, sedangkan superkonduktor Y-123 dalam bentuk padatan (*bulk*) dengan ukuran partikel dalam skala mikro memperlihatkan sifat paramagnetik. Superkonduktor Y-123 dalam bentuk padatan diperoleh dengan pemanasan pada suhu 940°C.

Penelitian  $REBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  (RE = Nd, Eu, Gd) yang sudah diuraikan di atas umumnya masih berkisar pada pengamatan struktur mikro (*micro-structure*), *magnetic trapped* dan analisis *flux pinning*. Sedangkan penelitian mengenai pengaruh substitusi RE pada superkonduktor Y-123 terhadap migrasi oksigen, faktor hunian (*occupancy*), pergeseran sudut fasa dan perubahan konstanta kisi, khususnya kombinasi **dua dan**

**tiga rare earth dengan komposisi molar yang sama** masih perlu diteliti. Penelitian partikel nano RE-123 masih sangat jarang dilakukan dan dari pengetahuan penulis, sintesis nano-partikel RE-123 dengan pengamatan sifat magnetik pada suhu ruang sampai saat ini belum pernah dilaporkan oleh peneliti lain.

Berdasarkan uraian di atas, maka penelitian dititikberatkan pada pengamatan pengaruh substitusi dan penggantian RE pada superkonduktor Y-123, terutama terhadap perubahan struktur kristal, sifat listrik dan magnetik bahan. Oleh karena itu disertasi ini mencakup tiga sub-tema kegiatan penelitian. **Pertama**, sintesis superkonduktor  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan variasi suhu re-kalsinasi dari 650 sampai 970°C, sintesis substitusi Nd pada superkonduktor  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan variasi x dari 0 sampai 1, dan sintesis superkonduktor RE-123 dengan kombinasi satu, dua dan tiga RE (*rare earth*). Sampel yang sudah berhasil disintesis, dikarakterisasi dengan *x-ray diffraction* (XRD) untuk mengetahui fasa-fasa yang terbentuk, karakterisasi *transmission electron microscopy* (TEM) dan *scanning electron microscopy* (SEM) untuk mengetahui morfologi sampel. **Kedua**, analisis *Rietveld* hasil karakterisasi *x-ray diffraction* (XRD), *high resolution powder diffraction* (HRPD) dan *synchrotron-ray diffraction* (SRD) untuk mengetahui struktur kristal (parameter kisi, ortorombisitas, faktor hunian/*occupancy*, dan kandungan oksigen). **Ketiga**, karakterisasi *vibrating sample magnetometer* (VSM) dan *superconducting quantum interference device* (SQUID) untuk mengetahui sifat listrik dan magnetik  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .

Sampel disintesis dengan *wet-mixing method* dan  $\text{HNO}_3$  sebagai *digest agent*. *Wet-mixing method* bertujuan untuk menghasilkan bahan dengan homogenitas tinggi dan biaya operasi yang rendah.

## 1.2. Perumusan Masalah

Dari uraian latar belakang masalah pada sub bab 1.1 dapat dilihat bahwa prosentase penelitian mengenai superkonduktor  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (RE = Nd, Eu, Gd) dengan RE tunggal lebih banyak dilakukan dibandingkan penelitian dengan kombinasi dua dan tiga RE. Kombinasi dua dan tiga RE dengan jari-jari ion berbeda mengakibatkan distorsi lokal struktur kristal, dan diketahui bahwa distorsi lokal struktur kristal suatu senyawa akan mempengaruhi sifat-sifat thermal, listrik, magnetik

dan sifat mekanik bahan. Oleh karena itu, penelitian ini bertujuan untuk mengetahui perubahan atau distorsi lokal struktur kristal superkonduktor  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  akibat penambahan satu, dua dan tiga kombinasi unsur-unsur Nd, Eu dan Gd dengan komposisi molar sama, serta mengetahui sifat magnetik pada bahan nano-partikel REBCO.

Berdasarkan uraian pada sub bab latar belakang, maka permasalahan pada penelitian ini adalah

- bagaimana cara memperoleh fasa tunggal superkonduktor  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$
- bagaimana pengaruh substitusi ion  $\text{Nd}^{3+}$  pada ion  $\text{Y}^{3+}$  terhadap struktur kristal (parameter kisi, volume sel, pergeseran sudut, ortorombisitas, *occupancy*), sifat listrik dan magnetik superkonduktor  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$
- bagaimana perbedaan struktur kristal (parameter kisi, volume sel, pergeseran sudut), sifat listrik dan magnetik superkonduktor  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  pada kombinasi satu, dua dan tiga RE dengan komposisi molar sama
- bagaimana cara memperoleh bahan NEG-123 dengan ukuran partikel dalam skala nano, dan bagaimana hubungan ukuran partikel dengan sifat magnetik pada suhu ruang

### 1.3. Tujuan Penelitian

Tujuan umum penelitian ini adalah untuk memperoleh superkonduktor  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan homogenitas dan rapat arus kritis tinggi.

Tujuan khusus penelitian ini adalah untuk mengetahui bagaimana pengaruh penggantian unsur Y dengan unsur Nd terhadap perubahan struktur kristal, sifat listrik dan magnetik superkonduktor  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . Disamping itu penelitian ini bertujuan mengetahui distorsi lokal struktur kristal superkonduktor  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  akibat penambahan unsur-unsur Nd, Eu dan Gd, pada kombinasi satu, dua dan tiga *rare earth*, serta mengetahui akibatnya pada sifat listrik dan magnetik  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  pada suhu ruang.

#### 1.4. Kontribusi Penelitian

Kontribusi penelitian terhadap perkembangan sains dan teknologi, khususnya dalam bidang material superkonduktor meliputi

- memberikan pengetahuan mengenai pengaruh substitusi maupun penggantian ion  $Y^{3+}$  dengan  $Nd^{3+}$  terhadap struktur kristal, sifat listrik dan magnetik superkonduktor  $Nd_xY_{1-x}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  dengan karakterisasi *X-ray diffraction* (XRD), *high resolution powder diffraction* (HRPD), *scanning electron microscopy* (SEM), dan *superconducting quantum interference device* (SQUID)
- memberikan pengetahuan mengenai struktur kristal, sifat listrik dan magnetik superkonduktor  $REBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  ( $RE = Nd, Eu, Gd$ ) dengan satu, dua dan tiga kombinasi unsur tanah jarang pada komposisi molar sama dengan karakterisasi XRD, *synchrotron-ray diffraction* (SRD), SEM dan SQUID
- memberikan pengetahuan mengenai sifat magnetik bahan nano-partikel  $REBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  pada suhu ruang dengan karakterisasi XRD, *transmission electron microscopy* (TEM) dan *vibrating sample magnetometer* (VSM).

## BAB 2

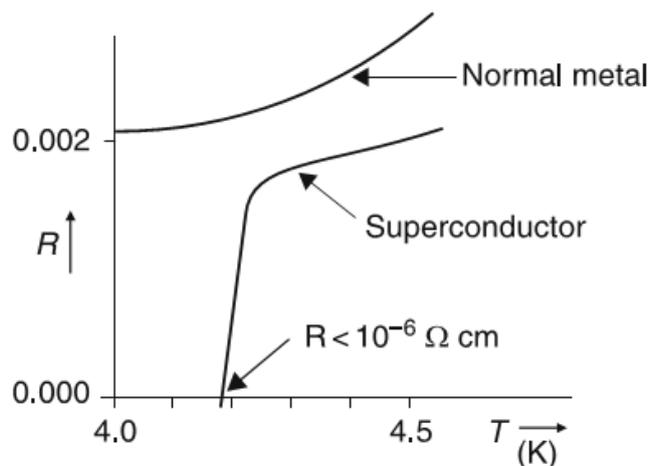
### KAJIAN PUSTAKA

#### 2.1. Superkonduktivitas

Pada kajian teori ini (dari sub bab 2.1.1 sampai sub bab 2.1.4) akan dibahas mengenai resistivitas nol, teori BCS, Efek Meissner, superkonduktor tipe I dan tipe II dengan mengacu pada beberapa referensi (M. A. Omar 1974; A. Bourdillon 1994; B.R. Lehndorff 2001; A. K. Saxena 2010).

##### 2.1.1. Resistivitas nol (*zero resistivity*)

Superkonduktor pertama kali ditemukan oleh H. Kamerlingh Onnes dari Universitas Leiden Belanda pada tahun 1911. Suatu bahan dapat dikatakan sebagai bahan superkonduktor, apabila mempunyai resistivitas ( $\rho$ ) dan medan magnet induksi ( $B$ ) di dalam bahan sama dengan nol. Jika suatu bahan superkonduktor didinginkan terus sampai mendekati daerah suhu nol absolut, maka pada suhu tertentu resistivitas normalnya akan turun secara drastis sampai menunjukkan resistivitas nol (*zero resistivity*). Suhu peralihan pada saat terjadinya perubahan dari resistivitas normal ke resistivitas nol disebut suhu kritis ( $T_c$ ). Gambar 2.1 memperlihatkan perbandingan pola penurunan harga resistivitas terhadap suhu dari bahan konduktor (Cu) dan superkonduktor (Hg).



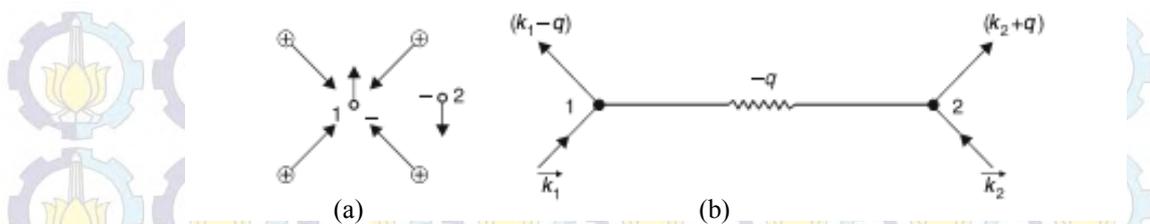
Gambar 2.1. Kurva hubungan resistivitas terhadap suhu dari bahan konduktor (Cu) dan superkonduktor (Hg) (A. K. Saxena 2010)

### 2.1.2. Teori BCS

Pemahaman secara teoritis mengenai fenomena superkonduktivitas muncul sekitar lebih dari 50 tahun setelah penemuan bahan superkonduktor. Teori tersebut pertama kali dikemukakan oleh J. Bardeen, L.N. Cooper dan J.R. Schrieffer yang dikenal dengan teori BCS. Teori mikroskopik BCS didasarkan pada beberapa hipotesa

- interaksi elektron-kisi mengarah ke interaksi elektron-elektron dan elektron membentuk pasangan yang saling mengikat pada keadaan superkonduktor
- interaksi elektron-elektron dimediasi oleh pertukaran fonon antara dua elektron yang berpasangan
- pasangan tersebut adalah elektron dengan *spin-up* yang mempunyai momentum  $\mathbf{k}$  dipasangkan dengan *spin-down* yang mempunyai momentum  $-\mathbf{k}$ , dan momentum sudut dari pasangan adalah nol
- panjang koherensi adalah sama dengan jarak dari pasangan, dan celah energi yang teramati sesuai dengan energi ikat dari pasangan.

Gambaran elektron konduksi dalam permukaan Fermi sebuah logam diperlihatkan pada Gambar 2.2. Dua elektron (berlabel 1 dan 2) terletak persis di permukaan Fermi. Jika mereka membentuk pasangan yang saling mengikat, gerakannya akan berkorelasi, asalkan tetap berada dekat dengan permukaan Fermi. Karena elektron 1 dekat dengan permukaan Fermi, maka kecepatannya sangat besar (sama dengan kecepatan Fermi). Pada saat elektron melewati ion positif, ion akan merespon dengan bergerak mendekati elektron (Gambar 2.2.a). Dalam teori medan, karena distorsi kisi (yang disebabkan oleh hamburan elektron), sebuah fonon terciptakan, dimana masing-masing elektron dikelilingi oleh awan fonon. Elektron 1 dan 2 berinteraksi melalui pertukaran fonon (Gambar 2.2.b). Momentum fonon  $q$  yang dipancarkan oleh elektron 1 diserap oleh elektron 2, sehingga elektron 1 dan 2 masing-masing mendapatkan momentum  $(\mathbf{k}_1 - q)$  dan  $(\mathbf{k}_2 + q)$ . Interaksi ini kuat, ketika elektron 1 dan 2 memiliki arah momentum dan spin yang berlawanan, yaitu  $(\mathbf{k}_1, -q_\uparrow)$  dan  $(\mathbf{k}_2, -q_\downarrow)$ .



Gambar 2.2. a. Interaksi elektron-elektron  
b. Pasangan yang dimediasi oleh fonon (A. K. Saxena 2010)

Ketersediaan fonon terbatas pada rentang energi kecil  $\hbar\omega_D = k_B\theta_D$ , di mana  $\omega_D$  adalah frekuensi Debye dan  $\theta_D$  adalah suhu Debye. Interaksi terjadi jika perbedaan energi adalah

$$E_{k_1} - E_{k_2} = \hbar\omega_D \quad (2-1)$$

Energi pasangan ( $\hbar\omega_D$ ) lebih rendah dibandingkan energi total elektron bebas. Sebagai hasilnya, sebuah gap terbentuk dekat energi Fermi, yang mana pendekatannya diberikan oleh  $2\Delta = 3.52k_B T_c$  pada  $T=0$  K, dengan  $k_B$  adalah konstanta Boltzmann dan  $T_c$  adalah suhu kritis. Di bawah  $T_c$ , parameter energi gap  $2\Delta$  naik secara tajam dari nol, mengikuti rumusan

$$2\Delta(T) \cong 3.52k_B T_c \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^{1/2} \quad (2-2)$$

Persamaan (2-2) hanya berlaku untuk superkonduktor dengan suhu kritis rendah (tipe I) dan tidak dapat diterapkan pada superkonduktor suhu tinggi (tipe II). Pada superkonduktor suhu tinggi, substitusi isotop oksigen menghasilkan perubahan harga  $T_c$  yang sangat kecil. Hal tersebut mengisyaratkan bahwa dalam superkonduktor suhu tinggi tidak tergambar adanya mekanisme elektron-fonon.

### 2.1.3. Efek Meissner

Peristiwa efek Meissner merupakan karakteristik lain dari bahan superkonduktor yang tidak dapat dihubungkan dengan keadaan resistivitas sama dengan nol. Tahun 1933 Meissner dan Ochsenfeld membuat percobaan mengukur medan magnet pada sebuah superkonduktor timah. Dengan menempatkan bahan superkonduktor dalam suatu medan magnetik kemudian didinginkan sampai suhu

bahan berada di bawah suhu kritis, maka bahan superkonduktor akan melayang. Peristiwa melayangnya superkonduktor dalam medan magnetik disebut efek Meissner.

Peristiwa efek Meissner hanya bisa diterangkan bila dimisalkan ada fluks magnetik yang keluar dari bahan superkonduktor atau dengan perkataan lain sebuah superkonduktor berkelakuan seperti sebuah diamagnetik sempurna. Penolakan fluks medan magnetik tersebut dapat diinterpretasikan sebagai pembangkitan arus pusar pada permukaan superkonduktor dengan konduktivitas tak berhingga atau resistivitas sama dengan nol. Rumusan elektrodinamika untuk medan magnetik induksi yaitu

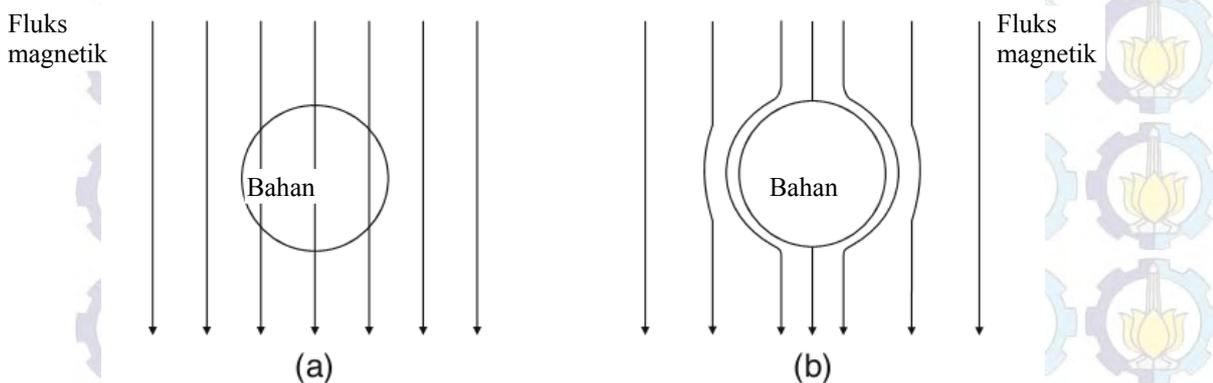
$$\mathbf{B} = \mu_o(\mathbf{H} + \mathbf{M}) \quad (2-3)$$

dengan  $\mathbf{M}$  adalah magnetisasi,  $\mathbf{H}$  adalah medan magnetik luar,  $\mu_o$  adalah  $4\pi \times 10^{-7}$ . Dalam keadaan superkonduktif, di bagian dalam superkonduktor  $\mathbf{B} = 0$ , maka akibatnya adalah  $\mathbf{H} = -\mathbf{M}$ , atau suseptibilitas mempunyai nilai -1.

$$\chi = \frac{H}{M} = -1 \quad (2-4)$$

Harga suseptibilitas tersebut menyatakan bahwa bahan superkonduktor bersifat diamagnetik sempurna, yang menunjukkan terjadinya penolakan medan magnetik dari bagian dalam bahan superkonduktor.

Pada Gambar 2.3 diberikan contoh penolakan fluks magnetik untuk bahan superkonduktor berbentuk bola.



Gambar 2.3. a. Fluks magnetik menembus bahan superkonduktor berbentuk bola pada  $T > T_c$

b. Fluks magnetik ditolak bahan superkonduktor berbentuk bola pada  $T < T_c$

### 2.1.4. Superkonduktor tipe I dan tipe II

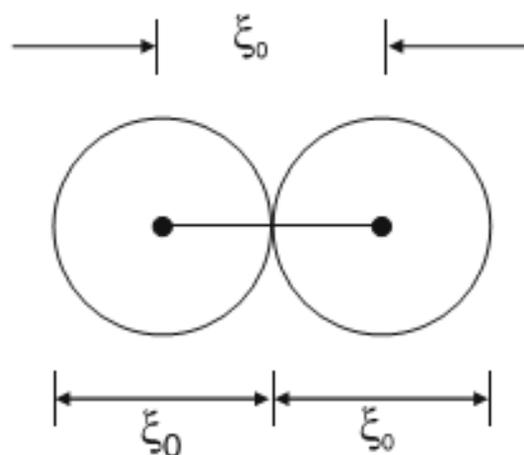
Apabila pada bahan superkonduktor diberi medan magnetik luar yang diperbesar, maka pada suatu harga medan magnetik tertentu sifat superkonduktor bahan tersebut akan hilang. Harga atau besar medan magnetik pada saat bahan kehilangan sifat superkonduktornya disebut medan magnetik kritis ( $H_c$ ).

Bahan-bahan superkonduktor umumnya diklasifikasikan ke dalam dua tipe yaitu tipe I dan tipe II. Klasifikasi tersebut muncul karena terdapat perbedaan kelakuan medan magnetik pada tiap-tiap jenis bahan superkonduktor. Parameter Ginzburg-Landau umumnya digunakan untuk membedakan superkonduktor tipe I dan tipe II.

Perbandingan dua panjang karakteristik yaitu perbandingan antara panjang penetrasi magnetik dengan panjang koherensi disebut dengan koefisien Ginzburg-

Landau ( $\kappa$ ) :  $\kappa = \frac{\lambda}{\xi} \cong$  konstan di sekitar  $T_c$ . Parameter panjang penetrasi magnetik ( $\lambda$ )

merupakan kedalaman permukaan bahan superkonduktor yang dapat ditembus oleh medan magnetik luar  $H$ . Selain itu,  $\lambda$  didefinisikan sebagai ketebalan daerah di sekitar teras tabung vorteks yang dialiri arus super dalam superkonduktor. Panjang koherensi ( $\xi$ ) adalah jarak antar elektron dalam pasangan *cooper* atau diameter fluksoid (vorteks) seperti terlihat pada Gambar 2.4.



(a)

Gambar 2.4. Panjang koherensi  $\xi$  pada pasangan *cooper* (A. K. Saxena 2010)

Dari hasil perhitungan Ginzburg-Landau diperoleh harga  $\kappa < \frac{1}{\sqrt{2}}$  untuk superkonduktor tipe I, sedangkan  $\kappa > \frac{1}{\sqrt{2}}$  untuk superkonduktor tipe II.

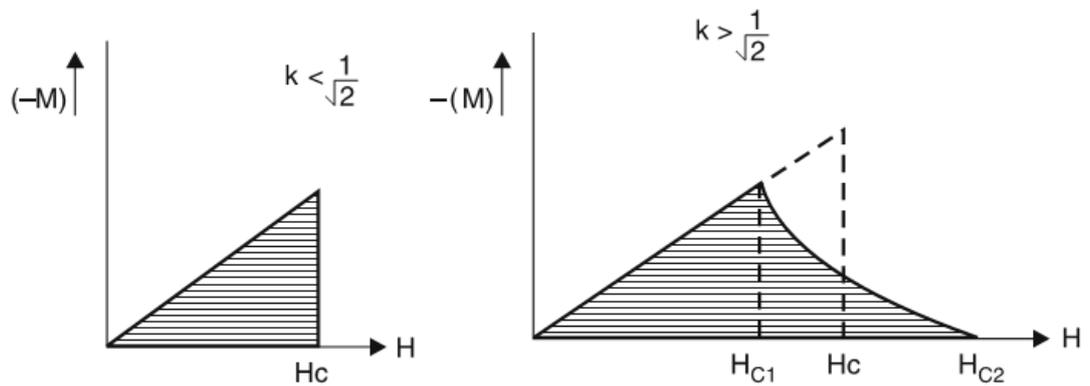
Apabila pada bahan tipe I diberikan medan magnetik yang diperbesar sampai mencapai nilai medan kritis  $H_c$ , maka superkonduktor secara mendadak dan tajam akan menjadi normal (kehilangan sifat superkonduktor). Hubungan tersebut diperlihatkan dalam gambar 2.5.a, sebagai hubungan medan magnet luar ( $H$ ) terhadap magnetisasi ( $M$ ). Daerah di dalam segitiga merupakan keadaan superkonduktor dengan resistivitas nol ( $\rho = 0$ ) dan medan magnetik di dalam bahan sama dengan nol ( $B = 0$ ). Sedangkan daerah di luar segitiga merupakan keadaan normal dimana medan magnetik dan resistivitas bahan tidak sama dengan nol ( $B \neq 0$  dan  $\rho \neq 0$ ). Kurva pada gambar 2.6 dapat didekati dengan fungsi parabolik, dan dapat diekspresikan dengan sebuah rumus, yaitu

$$H_c(T) = H_c(0) \left( 1 - \left( \frac{T}{T_c} \right)^2 \right) \quad (2-5)$$

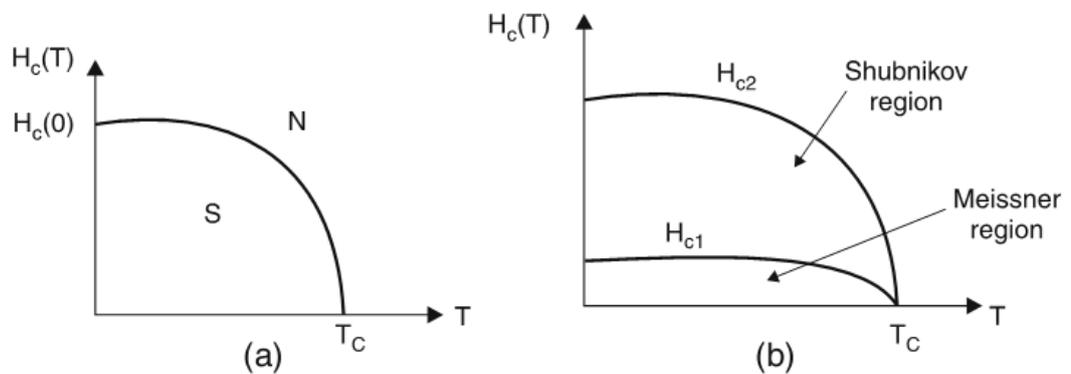
dengan  $H_c(T)$  adalah medan kritis pada suhu  $T$ ,  $H_c(0)$  adalah medan kritis pada suhu nol absolut,  $T_c$  adalah suhu kritis. Superkonduktor tipe I hanya sanggup mengalirkan arus dengan rapat arus kritis ( $J_c$ ) lebih kecil dari  $10^3 \text{ A/cm}^2$ , dan hanya dapat mempertahankan superkonduktivitas dalam medan magnetik ( $H_c$ ) maksimum  $10^3$  Gauss.

Hubungan antara medan magnetik luar dengan magnetisasi untuk superkonduktor tipe II diperlihatkan pada gambar 2.5.b. Superkonduktor tipe II mempunyai medan magnetik kritis terbawah ( $H_{c1}$ ) dan medan magnetik kritis teratas ( $H_{c2}$ ). Bila medan magnetik  $H$  yang lebih kecil dari  $H_{c1}$  diberikan pada bahan superkonduktor tipe II maka bahan akan bersifat diamagnetik sempurna (superkonduktor). Apabila medan magnetik diperbesar melebihi  $H_{c1}$ , maka bahan akan ditembus fluks magnetik. Fluks magnetik yang menembus selanjutnya akan menghasilkan arus sirkulasi di sekelilingnya. Arus sirkulasi ini akan menghasilkan vorteks atau fluksoid. Apabila medan makin diperbesar, maka makin banyak fluks yang menembus bahan. Ketika rapat vorteks cukup besar maka superkonduktor akan

masuk ke keadaan normal. Nilai medan pada saat superkonduktor masuk ke dalam keadaan normal disebut sebagai  $H_{c2}$ . Hilangnya superkonduktivitas pada superkonduktor tipe II karena pengaruh medan magnetik diperlihatkan pada gambar 2.6.b.



Gambar 2.5. a. Kurva medan magnetik terhadap magnetisasi superkonduktor tipe I  
b. Kurva medan magnetik terhadap magnetisasi superkonduktor tipe II (A. K. Saxena 2010)



Gambar 2.6. a. Kurva medan magnetik kritis terhadap suhu kritis pada superkonduktor tipe I  
b. Kurva hubungan magnetik kritis terhadap suhu kritis pada superkonduktor tipe II (A. K. Saxena 2010)

Vorteks pertama kali ditemukan oleh Abrikosov pada tahun 1957 dengan menggunakan teori Ginzburg-Landau. Diketahui bahwa medan magnetik  $B$  dalam

bahan superkonduktor adalah nol, oleh karena itu rapat arus  $\mu_0 \mathbf{J} = \nabla \times \mathbf{B}$  juga harus nol. Dengan menggunakan teorema Stokes, maka diperoleh persamaan

$$2\pi m = \frac{2e}{\hbar} \Phi = \frac{\Phi}{\Phi_0} \quad (2-6)$$

dengan  $\Phi$  adalah fluks magnetik dan  $\Phi_0$  disebut kuantum fluks magnetik. Jadi setiap vorteks membawa sebuah kuantum fluks magnetik sebesar  $\Phi_0 = \frac{\hbar}{2e} = 2 \times 10^{-15}$  Weber.

## 2.2. Superkonduktor Suhu Tinggi

Setelah penemuan superkonduktor suhu tinggi oleh Bednorz dan Muller (J.G. Bednorz 1987) pada senyawa  $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$  dengan suhu kritis sekitar 30 K, dan hanya dengan mengganti La dengan Y maka Wu dan kawan-kawan (M.K. Wu 1987) dapat meningkatkan suhu kritis menjadi 90 K pada superkonduktor  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{7-\delta}$  (YBCO). Superkonduktor suhu tinggi HTSC (High- $T_c$ ) merupakan superkonduktor yang sejauh diketahui terbuat dari senyawa oksida (keramik) mempunyai suhu kritis ( $T_c$ ), rapat arus kritis ( $J_c$ ) dan medan magnetik kritis ( $H_c$ ) yang tinggi (B.R. Lehndorff 2001).

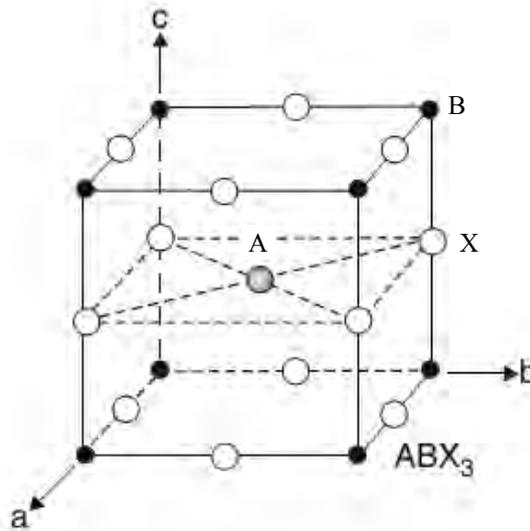
Superkonduktor keramik mengandung struktur lapisan  $\text{CuO}_2$  yang terdapat dalam satuan sel atau sub sel yang terpisah. Jumlah lapisan  $\text{CuO}_2$  diduga berhubungan erat dengan harga suhu kritis ( $T_c$ ) dan lapisan tersebut berperan dalam konduksi dua dimensi yang terjadi. Semakin banyak lapisan  $\text{CuO}_2$  dalam satu sel satuan, maka harga suhu kritis semakin tinggi.

Dua contoh senyawa keramik yang termasuk superkonduktor suhu tinggi, adalah superkonduktor  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  (YBCO) dan  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4}$  (BSCCO). Superkonduktor sistem BSCCO yang mempunyai rumus umum  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4}$  merupakan superkonduktor anisotropik. Keadaan anisotropik dalam superkonduktor  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4}$  disebabkan oleh kopling yang sangat lemah antara lapisan ganda  $\text{BiO-BiO}$ . Dari rumus senyawa tersebut, superkonduktor sistem BSCCO mempunyai tiga fase berkaitan dengan  $n = 1, 2, 3$  yaitu : fase 2201 (untuk senyawa  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_6$ ), fase 2212 ( untuk senyawa  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ ) dan fase 2223 ( untuk senyawa  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ ). Superkonduktor sistem BSCCO dengan fase 2201 mempunyai suhu kritis 30 K dengan satu lapisan  $\text{CuO}_2$  dalam satu sel satuan, fase 2212 mempunyai suhu

kritis 80 K dengan dua lapisan  $\text{CuO}_2$  dan fase 2223 mempunyai suhu kritis 110 K dengan tiga lapisan  $\text{CuO}_2$  (A. K. Saxena 2010).

Sifat-sifat superkonduktor keramik sistem  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  sangat dipengaruhi oleh kandungan oksigen yang terdapat dalam senyawa tersebut. Kandungan oksigen ditentukan oleh perlakuan pada proses pembuatannya. Superkonduktor sistem  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  mempunyai dua struktur yaitu struktur tetragonal ( $0 \leq x \leq 0.5$ ) yang bersifat semikonduktor dan struktur ortorombik ( $1 \geq x \geq 0.5$ ) yang bersifat superkonduktor. Secara mikroskopik, struktur kristal  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  adalah *tri-perovskite* non-stoikiometrik dengan struktur idealnya adalah  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  (T. Chatterji 2006).

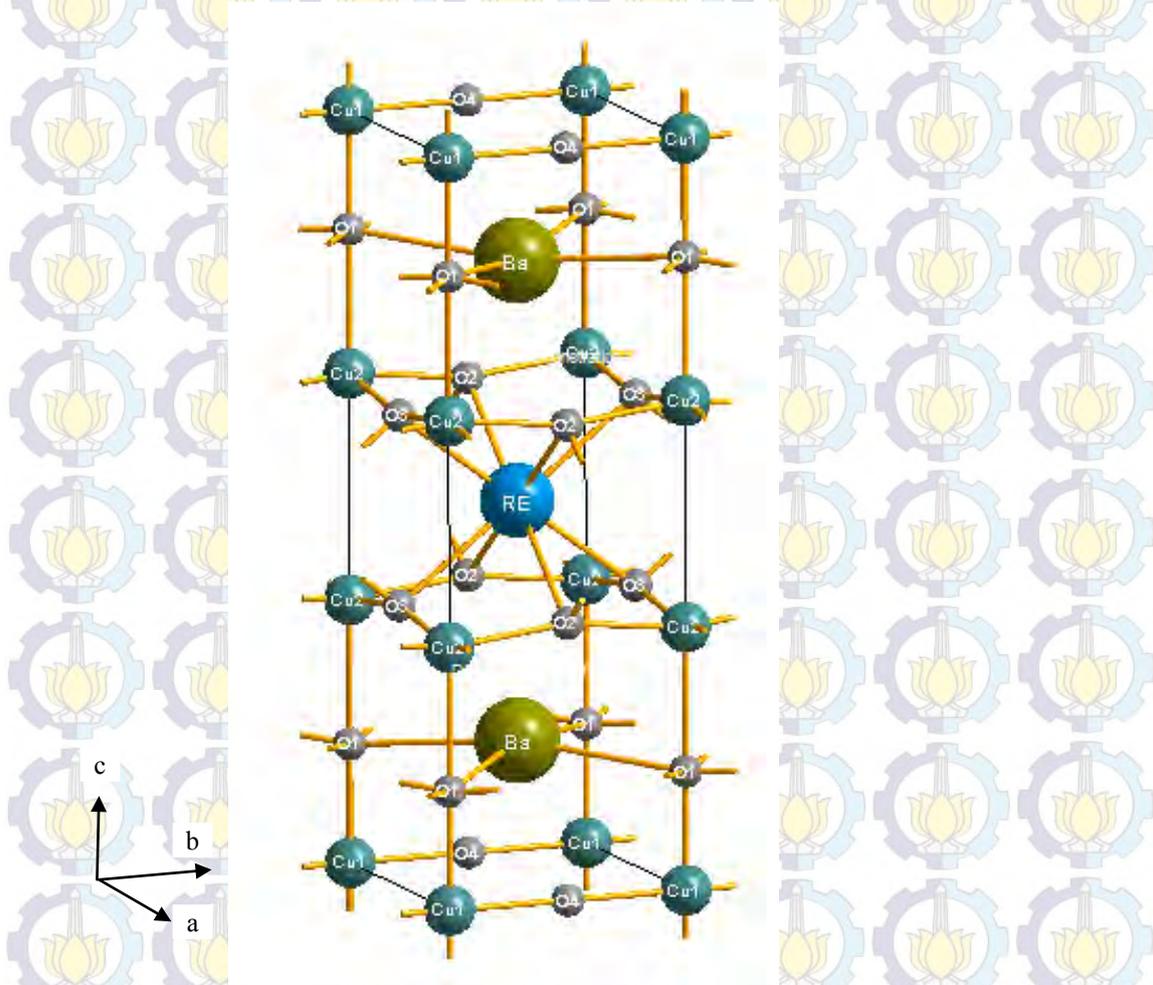
Struktur Perovskite  $\text{ABX}_3$  diperlihatkan pada Gambar 2.7, di mana simbol A adalah atom Y, Nd atau Ba, simbol B adalah atom Cu dan simbol X adalah atom oksigen.



Gambar 2.7. Struktur perovskite  $\text{ABX}_3$  (T. Chatterji 2006)

Struktur kristal  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  terdiri dari lapisan  $\text{CuO}_x$ ,  $\text{BaO}$ ,  $\text{CuO}_2$ , Y,  $\text{CuO}_2$ ,  $\text{BaO}$ , dan  $\text{CuO}_x$  seperti diperlihatkan pada Gambar 2.8. Lapisan  $\text{CuO}_x$  disebut lapisan basal dimana terdapat oksigen nonstoikiometri. Untuk  $x = 0$  bidang basal hanya terdiri dari atom Cu. Posisi oksigen (yang disebut O4) kosong. Untuk  $x = 1$ , oksigen pada posisi O4 penuh dan mengubah lapisan menjadi bidang Cu-O sepanjang sumbu b. Proses doping sangat berpengaruh dalam lapisan  $\text{CuO}_x$ . Valensi atom Cu (posisi Cu1)

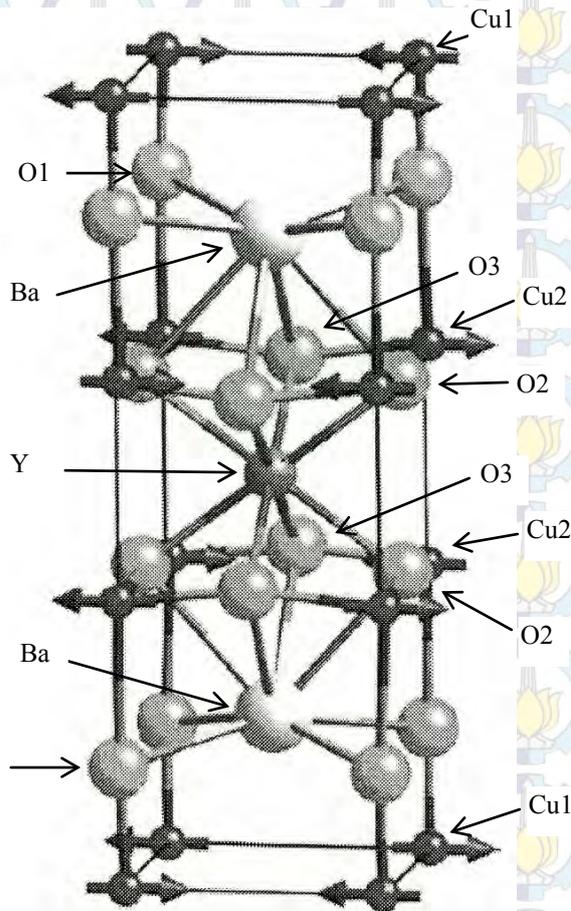
dalam bidang basal untuk  $x = 0$  adalah  $\text{Cu}^{1+}$  sedangkan valensi ion Cu (posisi Cu2) dalam lapisan ganda  $\text{CuO}_2$  adalah  $\text{Cu}^{2+}$ . Dengan penambahan jumlah oksigen, akan terjadi perubahan terbesar dalam keadaan oksidasi pada atom Cu dalam bidang basal  $\text{CuO}_x$  dan keadaan oksidasi dari ion Cu ini berkisar antara +2 dan +3.



Gambar 2.8. Struktur kristal senyawa  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  atau  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Struktur magnetik dari tetragonal  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  untuk harga  $x$  ke cil adalah antiferomagnetik. Antiferomagnetik  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  adalah tetragonal (grup ruang  $P4/mmm$ ) dengan parameter kisi  $a = b \approx 3.86 \text{ \AA}$ ,  $c \approx 11.82 \text{ \AA}$  untuk  $x = 0$ . Posisi Cu1 ditempati oleh ion non magnetik  $\text{Cu}^{1+}$  ( $S = 0$ ) dalam konfigurasi elektronik  $3d^{10}$ . Posisi Cu2 ditempati oleh ion magnetik  $\text{Cu}^{2+}$  mempunyai spin  $S = \frac{1}{2}$  dalam konfigurasi  $3d^9$ . Gambar 2.9 memperlihatkan skema struktur antiferomagnetik  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ . *Magnetic ordering* muncul di bawah suhu Neel ( $T_N$ )  $\approx 410 \text{ K}$ , yang mengimplikasikan interaksi yang sangat kuat dalam bidang tetangga terdekat Cu-Cu. Vektor propagasi  $\mathbf{k} = (1/2,$

1/2, 0) dan momen magnetik adalah sepanjang sumbu a, mengimplikasikan anisotropik ortorombik yang kecil dalam penggambaran sistem magnetik spin Hamiltonian. Pada suhu rendah, momen magnetik untuk ion Cu diperoleh sebesar  $0.64\mu_B$ , yang mengasumsikan faktor bentuk isotropik. Jadi disana terjadi reduksi yang kuat dari momen magnetik yang diakibatkan fluktuasi quantum dan pengaruh kovalensi.



Gambar 2.9. Skema struktur antiferomagnetik  $YBa_2Cu_3O_6$  (T. Chatterji 2006)

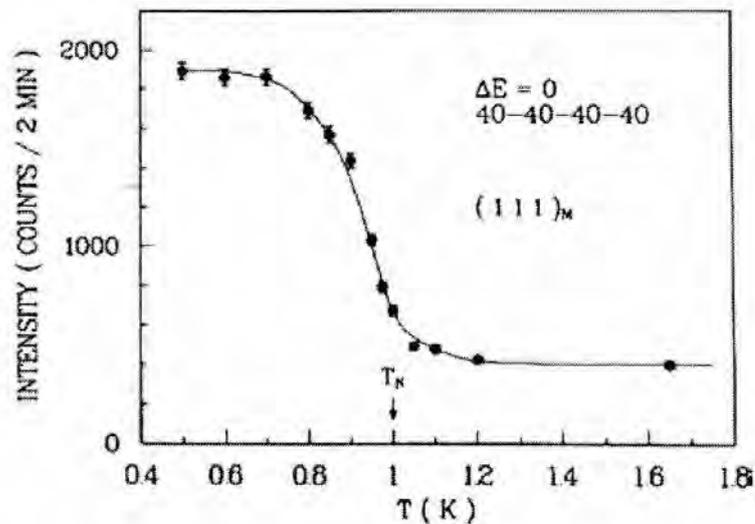
Superkonduktor sistem  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  (Y-123) kemudian dikembangkan menjadi superkonduktor sistem  $(RE)Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ , dengan mengganti blok Y dengan blok (RE) yang tersusun oleh ion-ion tanah jarang (*rare earth*) Nd, Eu dan Gd. Ion-ion Nd, Eu dan Gd merupakan bahan-bahan magnetik. Tujuan dari penggantian ion Y dengan ion-ion Nd, Eu dan Gd adalah untuk menghasilkan bahan superkonduktor dengan rapat arus kritis dan medan magnetik kritis yang tinggi. Superkonduktor sistem  $(RE)Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$

(RE-123) lebih baik dibandingkan superkonduktor  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , dan bahkan diprediksi sebagai bahan paling berpotensi untuk dapat diaplikasikan dewasa ini. Keunggulan superkonduktor RE-123 dibandingkan superkonduktor suhu tinggi lain karena mempunyai suhu kritis, rapat arus kritis, medan magnetik kritis yang lebih besar, serta ketahanan terhadap lingkungan lebih baik.

Atom Y dapat disubstitusi oleh semua elemen magnetik unsur tanah jarang kecuali Pr, tanpa menimbulkan perubahan yang berarti terhadap harga  $T_c$ . Awalnya dipercaya bahwa  $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  merupakan anomali dalam  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  karena tidak menunjukkan sifat superkonduktor. Akan tetapi anggapan tersebut hilang setelah Zou dan kawan-kawan (Z. Zou 1998) berhasil membuat superkonduktor  $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  dengan suhu kritis ( $T_c$ ) sekitar 85 K.

Ion  $\text{Cu}^{2+}$  dalam  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  memunculkan sifat antiferomagnetik pada suhu relatif tinggi. Sedangkan *magnetic ordering* atom-atom unsur tanah jarang muncul pada suhu yang sangat rendah. *Magnetic ordering* ion  $\text{Cu}^{2+}$  dalam  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  sama dengan  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  dengan vektor propagasi  $\mathbf{k} = (1/2, 1/2, 0)$  (T. Chatterji 2006).

*Magnetic ordering* Dy dalam  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  telah diamati oleh Goldman dan kawan-kawan (A.I. Goldman 1987) dengan menggunakan difraksi neutron. Struktur antiferomagnetik ion Dy muncul pada  $T_N \approx 1$  K dengan vektor propagasi  $\mathbf{k} = (1/2, 1/2, 1/2)$ . Gambar 2.10 memperlihatkan variasi suhu dari puncak magnetik  $(1/2, 1/2, 1/2)$  atau (111) dalam indeks sel. Intensitas puncak magnetik menurun secara kontinu dengan penambahan suhu dan menjadi nol pada  $T_N \approx 14$  K.



Gambar 2.10. Variasi suhu puncak magnetik (1/2, 1/2, 1/2) atau (111) dalam indeks sel (T. Chatterji 2006)

### 2.3. Difraksi Sinar-X dan Sinkrotron

Sinar-X merupakan gelombang elektromagnetik dengan orde panjang gelombang 0,1-10 Å. Elektron dipancarkan dari tabung katoda yang dipercepat oleh potensial yang sangat tinggi. Elektron yang dipancarkan mempunyai energi kinetik yang sangat besar, sehingga apabila menumbuk target logam yang berfungsi sebagai anoda maka sinar-X akan dipancarkan dari target logam tersebut. Sedangkan elektron yang dipercepat oleh potensial tinggi dan bergerak dalam medan magnetik akan melepaskan energi secara terus-menerus dalam bentuk radiasi elektromagnetik (foton) yang disebut dengan radiasi sinkrotron. Secara umum tidak ada perbedaan yang signifikan antara penggunaan sinar-X dan sinkrotron, hanya saja kemunculan beberapa puncak dengan intensitas cukup tinggi apabila menggunakan sumber sinkrotron yang diakibatkan oleh distribusi kontinu dari energi foton.

Difraksi merupakan suatu metode yang digunakan untuk mengamati struktur kristal suatu bahan, yang berkaitan dengan sifat gerak gelombang. Apabila berkas sinar dijatuhkan pada cuplikan, maka hamburan koheren yang terjadi pada arah sudut-sudut tertentu, sesuai dengan perumusan Bragg

$$2 d(hkl) \sin \theta (hkl) = \lambda \quad (2-7)$$

dengan  $d(hkl)$  adalah jarak antar bidang Miller,  $\lambda$  adalah panjang gelombang berkas sinar dan  $\theta$  adalah sudut antara sinar datang dan bidang hamburan.

Perhitungan intensitas untuk hamburan sinar-X dan sinkrotron adalah sama, sehingga dapat mengacu pada satu kasus sumber saja yaitu sinar-X. Hamburan Thomson untuk satu elektron dinyatakan dengan *differential cross section* ( $\frac{d\sigma_s}{d\Omega}$ ), yang merepresentasikan probabilitas sinar-X terhambur dalam detektor yang dinyatakan sebagai

$$\frac{d\sigma_s}{d\Omega} = \frac{I_e R^2}{I_o} = r_e^2 \left[ \frac{1 + \cos^2 \theta}{2} \right] \quad (2-8)$$

dengan  $I_e$  menyatakan intensitas sinar-X yang dihamburkan,  $I_o$  intensitas sinar-X datang,  $r_e$  adalah jari-jari elektron,  $(1 + \cos^2 \theta)$  adalah faktor polarisasi (B.K. Agarwal 1991).

Berkas sinar-X yang dihamburkan oleh cuplikan bergantung pada resultan gelombang yang dihamburkan oleh seluruh atom di dalam sel satuan yang disebut sebagai faktor struktur geometri  $F(k)$ . Sehingga *differential cross section* dapat ditulis sebagai

$$\frac{d\sigma_c}{d\Omega} = r_e^2 \left[ \frac{1 + \cos^2 \theta}{2} \right] |F(k)|^2 \quad (2-9)$$

dan faktor struktur geometri  $F(k)$  dinyatakan dengan

$$F(k) = \sum_1^N f e^{2\pi i(hu + kv + lw)} \quad (2-10)$$

dengan  $f$  adalah faktor hamburan atom,  $N$  jumlah atom dalam sel satuan dan  $(uvw)$  menyatakan koordinat atom dalam sel satuan.

Selain itu ada beberapa faktor yang berperan dalam menentukan intensitas sinar-X yang dihamburkan, antara lain faktor multiplisitas, absorpsi, suhu dan faktor polarisasi Lorentz. Dengan memperhitungkan seluruh faktor-faktor tersebut, secara umum intensitas pola difraksi yang dihasilkan oleh pantulan Bragg dapat dituliskan sebagai (B.D. Cullity 1978) :

$$I = \left[ \frac{I_o e^4}{m^2 c^4} \right] \left[ \frac{\lambda^3 A}{32\pi r} \right] \left[ \frac{1}{v^2} \right] |F|^2 P \left[ \frac{1 + \cos^2 2\theta}{\sin^2 \theta \cos \theta} \right] \left[ \frac{e^{-2M}}{2\mu} \right] \quad (2-11)$$

dengan  $e$  adalah muatan elektron,  $m$  massa elektron,  $c$  kecepatan cahaya,  $\lambda$  panjang gelombang sinar-X,  $A$  penampang lintang terhadap sinar datang,  $r$  jari-jari difraktometer,  $p$  faktor multiplisitas,  $v$  volume sel satuan,  $F$  faktor struktur,  $e^{-2M}$  faktor suhu dengan  $M = B \sin^2\theta/\lambda^2$ ,  $B$  faktor Debye-Waller,  $\mu$  koefisien absorpsi linier,  $\theta$  sudut hamburan Bragg.

Dalam proses *refinement*, parameter-parameter yang di *refine* adalah faktor multiplisitas ( $p$ ), faktor struktur ( $F$ ), faktor suhu ( $e^{-2M}$ ) dan sudut hamburan Bragg ( $\theta$ ).

## 2.4. Difraksi Neutron

Hamburan neutron termal merupakan suatu teknik yang sangat baik digunakan untuk investigasi struktur suatu bahan. Penggunaan teknik ini didasarkan pada sifat dasar dari neutron yang diperlihatkan pada Tabel 2.1.

Tabel 2.1. Sifat dasar dari neutron (T. Chatterji 2006)

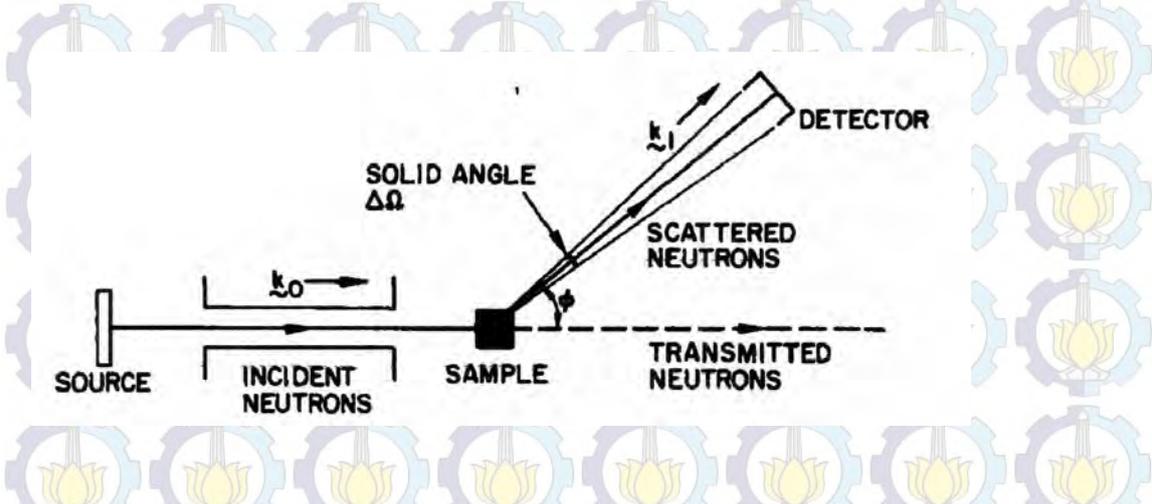
No	Property	Value or equation
1	Mass	1.0087 atomic mass units
2	Charge	0
3	$\beta$ -decay life time	885.8±0.9s
4	Free neutron decay	$n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}_e$
5	Spin	$\frac{1}{2}$
6	Magnetic moment, $\mu_n$	-1.9130427 $\mu_N$

Tabel 2.1 memperlihatkan bahwa neutron bermuatan nol, mempunyai daya tembus yang besar, interaksi dengan zat tergolong lemah dan tidak mengganggu sistem. Karena interaksinya lemah, maka aproksimasi Born orde pertama dapat digunakan untuk menghitung penampang hamburan absolut. Amplitudo hamburan neutron bervariasi secara non-monoton dari unsur ke unsur. Untuk isotop yang berbeda dalam unsur yang sama amplitudo hamburannya juga berbeda.

Neutron mempunyai spin, sehingga hamburannya bergantung pada spin inti bahan. Kebolehjadian hamburan dengan spin paralel dan spin antiparalel berbeda, yang menimbulkan hamburan koheren dan inkoheren.

Neutron mempunyai momen magnetik, sehingga dapat berinteraksi dengan elektron yang tidak berpasangan dari atom magnetik. Hamburan neutron dapat memberikan informasi tentang struktur magnetik, distribusi magnetik dan arah spin dari bahan magnetik.

Dalam pengukuran menggunakan teknik hamburan neutron, berkas neutron dilewatkan pada monokromator agar radiasi yang jatuh pada sampel mempunyai satu panjang gelombang neutron (monokromatik) dengan vektor gelombang  $k_0$ . Sebagian radiasi neutron akan ditransmisikan oleh sampel, sisanya akan diserap serta dihamburkan oleh sampel. Hamburan yang terjadi akan ditangkap oleh detektor dalam arah  $k_1$ , seperti diperlihatkan pada Gambar 2.11 (K. Skold 1986).



Gambar 2.11. Skema percobaan hamburan neutron (K. Skold 1986)

Radiasi neutron yang dihamburkan oleh sampel dan interaksinya digambarkan dengan *differential cross section*

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{C}{\Phi N(\Delta\Omega)\eta} \quad (2-12)$$

dengan  $\Phi$  jumlah neutron yang melewati luasan persatuan waktu (fluks neutron datang),  $N$  jumlah atom,  $\Delta\Omega$  sudut padatan detektor,  $\eta$  efisiensi detektor,  $C$  kecepatan cacah detektor. *Differential cross section* adalah fungsi dari besar dan arah  $k_0$  dan  $k_1$  dan merupakan sifat dari sampel yang terukur.

Interaksi antara neutron dengan sebuah atom dapat terjadi melalui dua interaksi, yaitu karena pengaruh gaya inti, dan pengaruh medan magnetik dalam atom, yang digambarkan dalam bentuk amplitudo hamburan.

Hamburan neutron oleh inti disebabkan oleh gaya inti yang mempunyai kisaran panjang gelombang antara  $10^{-12}$ - $10^{-13}$  cm. Panjang gelombang neutron termal sekitar  $10^{-8}$  cm yang mana lebih besar dibandingkan panjang gelombang gaya inti. Interaksi antara neutron dengan sebuah atom melalui gaya inti dapat digambarkan dalam bentuk yang sederhana dan dari definisi *cross section* maka diperoleh

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = b^2 \quad (2-13)$$

dengan  $b$  adalah panjang hamburan dan besarnya hanya dipengaruhi oleh *atomic number*  $Z$  dan *atomic weight*  $A$ .

Sedangkan *cross section* hamburan magnetik yang disebabkan oleh elektron yang tidak berpasangan diberikan oleh persamaan

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = (\gamma r_o)^2 [f(k_1 - k_o)]^2 S(S+1) \quad (2-14)$$

dengan  $\gamma r_o \approx 0.54 \times 10^{-12}$  cm,  $S$  adalah bilangan kuantum spin untuk ion, dan  $f(Q) = f(k_1 - k_o)$  adalah faktor bentuk magnetik yang merupakan transformasi Fourier rapat distribusi elektron yang tidak berpasangan dari pusat ion.

Intensitas hamburan neutron diperoleh dari *double differential cross section* yang diberikan oleh persamaan

$$I(\vec{Q}, E) = \frac{d\sigma^2}{d\Omega dE} = \frac{1}{N} \left( \frac{k_1}{k_o} \right) \frac{1}{2\pi\hbar} \sum_{i,j} b_i b_j \int_{-\infty}^{\infty} \left\langle e^{-i\vec{Q}\cdot\vec{r}_i(0)} e^{i\vec{Q}\cdot\vec{r}_j(t)} \right\rangle e^{1-(E/\hbar)t} dt \quad (2-15)$$

dan faktor struktur

$$F(\vec{Q}) = \frac{1}{N} \sum_{i,j} b_i b_j \int_{-\infty}^{\infty} \left\langle e^{-i\vec{Q}\cdot\vec{r}_i(0)} e^{i\vec{Q}\cdot\vec{r}_j(t)} \right\rangle dt \quad (2-16)$$

dengan  $\hbar$  konstanta Planck,  $\vec{Q}$  vektor hamburan dengan  $\vec{Q} = \vec{k}_o - \vec{k}_1$ ,  $E$  energi neutron,  $r_i(0)$  posisi atom pada saat 0,  $r_j(t)$  posisi atom pada saat  $t$  (K. Skold 1986).

Salah satu aplikasi neutron diterapkan pada HRPD (*High Resolution Powder Diffraction*). HRPD merupakan difraktometer dengan sumber radiasi neutron dan memiliki resolusi relatif tinggi, yang umumnya digunakan untuk mengamati struktur kristal dan struktur magnetik suatu bahan. Neutron juga digunakan untuk meneliti atom ringan dengan kehadiran atom berat, misalnya dalam paduan logam yang mengandung atom ringan dan atom berat.

## 2.5. Pengukuran Rapat Arus Kritis ( $J_c$ )

Rapat arus kritis bahan superkonduktor dapat diketahui dengan pengukuran medan magnetik. Pengukuran medan magnetik berbeda dengan pengukuran resistivitas. Perbedaan tersebut terdapat dalam beberapa hal. *Pertama* : sampel tidak memerlukan kontak listrik dan diperlukan sampel dalam jumlah yang tidak terlalu banyak, bahkan dapat digunakan sampel dalam bentuk serbuk. *Kedua*, sinyal magnetik diberikan pada suhu di bawah  $T_c$  pada saat nilai resistivitas berubah menjadi nol dan sinyal magnetik dapat digunakan untuk mengukur bahan pada suhu rendah. *Ketiga*, fraksi volume superkonduktor (*superconducting volume fraction*) dapat diestimasi. *Keempat*, sinyal dapat diberikan walaupun ada bagian dari bahan padatan yang terputus (terjadi *crack*) atau tidak dipengaruhi oleh kontak antar butiran (M. I. Youssif 2000).

Salah satu peralatan yang digunakan untuk mengamati sifat magnetik (momen magnetik) adalah dengan *superconducting quantum interference device* (SQUID). Keluaran dari peralatan SQUID dapat berupa data momen magnetik (m) sebagai fungsi suhu (T) atau data momen magnetik sebagai fungsi kuat medan (H).

Momen magnetik biasanya dihubungkan dengan gerakan orbital atau gerakan spin dari pertikel bermuatan dalam bahan. Ketika membandingkan bahan yang berbeda atau bahan dengan ukuran berbeda, hal yang perlu diketahui adalah kuantitas makroskopis dari magnetisasi atau momen magnetik total per satuan volume atau per satuan massa :

$$M = \frac{m}{V} \quad (2-17)$$

Sedangkan suseptibilitas magnetik ( $\chi$ ) didefinisikan sebagai intensitas magnetik yang diperoleh dari penghalang kecil yang ditempatkan dalam medan magnetik. Kondisi medan dari satuan gaya medan atau suseptibilitas didefinisikan sebagai perbandingan magnetisasi (M) dengan kuat medan magnetik (H) :

$$\chi = \frac{M}{H} \quad (2-18)$$

Rapat arus kritis dari bahan superkonduktor dihitung berdasarkan model Bean (C.P. Bean 1964). Teori ini berawal dari sebuah arus yang diinduksi oleh perubahan medan magnetik yang ditempatkan tegak lurus dengan sampel superkonduktor dengan mengikuti hukum Faraday. Arus tersebut mengalir mengikuti hukum Lenz untuk

melawan fluks muatan dalam kaitannya dengan pemberian medan magnetik. Bean membuat dua asumsi pengertian histeresis secara teori dalam superkonduktor tipe II. Asumsi pertama model Bean, bahwa magnetisasi  $M$  akan berubah secara linier melalui bahan superkonduktor dengan jari-jari  $r$  dan seluruh perubahan dalam distribusi fluks diinduksi pada permukaan bahan. Asumsi kedua, kehadiran gaya elektromotif terkecil akan menghasilkan satu rapat arus kritis.

Perhitungan harga rapat arus kritis menggunakan model Bean untuk sampel berbentuk serbuk dapat dilakukan dengan menggunakan data hasil karakterisasi SQUID (grafik M-H) (A. Ehmann 1993; T. Rentschler 1994) yaitu

$$J_c = \frac{3M_r}{2rV} \quad (2-19)$$

Fraaksi volume superkonduktor dihitung dari hasil karakterisasi suseptibilitas terhadap suhu pada *zero field cooling* (ZFC) dengan menggunakan hubungan

$$\chi = \frac{M}{H_{eff}V} \quad \text{dimana} \quad H_{eff} = \left( \frac{1}{1-n_M} \right) H_o \quad \text{dan} \quad n_M \approx 1/3 \quad (2-20)$$

dan dibandingkan dengan diamagnetik sempurna

$$\chi = -1/4\pi \quad (2-21)$$

## 2.6. Penelitian yang sudah dilakukan sampai saat ini

Keberhasilan M.K. Wu, dan kawan-kawan (M.K. Wu 1987) mendapatkan superkonduktor keramik sistem YBCO dengan suhu kritis sekitar 90 K, mendorong para peneliti untuk meneliti lebih lanjut mengenai bahan superkonduktor tersebut agar menghasilkan superkonduktor yang mempunyai struktur kristal tunggal, mempunyai homogenitas, suhu kritis, rapat arus kritis dan medan magnetik kritis tinggi, serta metode sintesis yang efektif dan efisien, baik dalam hal waktu maupun biaya.

Berbagai cara telah dilakukan agar tercapai tujuan tersebut, di antaranya dengan substitusi kation, variasi suhu sintering, variasi metode pemrosesan maupun *doping*. Untuk meningkatkan rapat arus kritis superkonduktor, T. Goto dan kawan-kawan telah mensintesis superkonduktor  $(Nd_{0,33}Eu_{0,38}Gd_{0,28})Ba_2Cu_3O_x$  dengan *doping* Zr sebesar 0,1% serta penambahan 0,1% oksigen dan 0,1% gas argon dengan metode *solution spinning* (T.Goto 2005). Senyawa awal dilarutkan dalam larutan *aqueous poly (vinyl alcohol)* dengan *propionic acid* dan *2-hydroxy isobutyric acid*. Proses pembentukan

kristal dilakukan dengan menggunakan metode pelelehan sebagian (*partial melting*) pada suhu 990°C. Pengukuran rapat arus kritis pada suhu 77 K dengan aplikasi medan magnetik 6 T, telah menghasilkan  $J_c$  sebesar  $10^5$  A/cm<sup>2</sup>. Penambahan *doping* Zr juga dilakukan oleh Caixuan Xu dan kawan-kawan (C. Xu 2007) pada superkonduktor GdBa<sub>2-x</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>. Proses sintesis dilakukan dengan metode pelelehan pada suhu 1030°C yang dimodifikasi dengan proses *top-seed* dan pada tahap akhir dilakukan proses anil menggunakan gas oksigen dan argon. Penambahan 0.4 mol % ZrO<sub>2</sub> telah menghasilkan  $J_c$  sebesar  $10^5$  A/cm<sup>2</sup> pada suhu 77 K. Selain itu, penelitian untuk meningkatkan rapat arus kritis juga telah dilakukan oleh E. Ban dan kawan-kawan dengan *doping* ZnO dan ZrO<sub>2</sub> secara bersamaan. Penambahan *doping* sebesar 0,1 persen Zn dan 0,1 persen Zr secara bersamaan pada superkonduktor Eu-Ba-Cu-O melalui proses *partial melting* serta penambahan 0,1 persen oksigen dan 0,1 persen argon telah menghasilkan  $J_c$  sebesar  $1,8 \times 10^4$  A/cm<sup>2</sup> pada suhu 77 K (E. Ban 2007). Peningkatan rapat arus kritis juga ditentukan oleh homogenitas fasa 211 dalam sampel seperti yang dilaporkan oleh Diko dan kawan-kawan (P. Diko 2006) dengan melakukan sintesis superkonduktor (RE)<sub>1+x</sub>Ba<sub>2-x</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> menggunakan metode *Top Seeded Melt Growth* (TSMG).

Pada bab pendahuluan telah disinggung bahwa penelitian mengenai *doping* Ag pada superkonduktor Gd-123 dan Y-123 telah dilakukan oleh N. Sakai dan N. Mori (N. Sakai 2005; N. Mori 2006). Penambahan Ag telah mengisi porositas, mengurangi batas butiran, mengurangi resistivitas keadaan normal dan mengurangi efek *weak-link*. Metode pelelehan digunakan oleh N. Sakai dan kawan-kawan untuk pertumbuhan kristal Gd<sub>1+x</sub>Ba<sub>2-x</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, sedangkan metode *infiltration growth* digunakan oleh N. Mori dan kawan-kawan untuk pertumbuhan kristal Y<sub>1+x</sub>Ba<sub>2-x</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>.

Ukuran butiran bahan superkonduktor sangat penting untuk mekanisme aliran arus dalam bahan. Penelitian untuk memperoleh ukuran butiran yang besar telah dilakukan oleh S. Nariki dan kawan-kawan, dengan penambahan BaCeO<sub>3</sub> (*barium cerate*) pada superkonduktor sistem Gd123. Sampel dengan komposisi Gd123 : BaCeO<sub>3</sub> : Gd211 = 100 : 40-x : x (x = 0-40) ditambah dengan 20 persen Ag<sub>2</sub>O dan 0,5 persen Pt serta dialiri 1 persen oksigen telah disintesis dan menghasilkan sampel dengan ukuran butiran berkisar antara 25 dan 33 mm (S. Nariki 2006). Penelitian dengan penambahan campuran logam Bi-Sn-Cd pada superkonduktor Gd-123 untuk

memperoleh ukuran butiran yang besar telah dilaporkan oleh Y. Kimura dan kawan-kawan (Y. Kimura 2006).

Penelitian mengenai *flux pinning* dan *magnetic trapped* diantaranya dilakukan oleh M.R. Koblishka (M. R. Koblishka 2000) dan A. Hu (A. Hu 2004). M.R. Koblishka dan kawan-kawan mensintesis superkonduktor NEG-123 dengan metode *Oxygen Controlled Melt Growth* (OCMG), sedangkan A. Hu mensintesis SEG-123 dengan metode pelelehan.

Ketepatan dan ketelitian menentukan komposisi molar bahan awal merupakan salah satu keberhasilan dalam sintesis superkonduktor REBCO. Hal tersebut telah dibuktikan oleh Yang Li (Y. Li 2004) dengan melakukan sintesis superkonduktor Eu-Ba-Cu-O dengan variasi  $x$  pada senyawa superkonduktor  $\text{Eu}_{1+x}\text{Ba}_{2-x}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . Dengan menambah Eu dari komposisi molar  $x = 1$  menjadi  $x = 1,02$ , dapat menurunkan harga suhu kritis dari 92 K menjadi 55 K.

Beberapa penelitian untuk menghasilkan sampel dengan ukuran partikel dalam skala nanometer telah dilakukan, diantaranya oleh Sundaresan dan kawan-kawan dari India (A. Sundaresan 2009), yang memperlihatkan sifat feromagnetik non-magnetik oksida  $\text{CeO}_2$  dan  $\text{Al}_2\text{O}_3$  pada suhu ruang. Histeresis feromagnetik juga telah diamati dalam *graphite* yang diiradiasi proton (P. Esquinazi 2002) dan feromagnetik suhu tinggi ditemukan dalam *alkaline-earth hexaboride* (D.P. Young 1999).

Seperti telah disebutkan pada bab pendahuluan, magnetik partikel nano digunakan sebagai komponen aktif dari *ferrofluids*, pembuatan *tape*, dan dalam aplikasi *biomedical* (R.W. Chantrell 1994; H. Gu 2003). Aplikasi partikel nano begitu luas, sehingga mendorong peneliti untuk mensintesis partikel nano pada bahan superkonduktor seperti yang telah dilaporkan oleh Rao dan kawan-kawan (A. Shipra 2007). Rao dan kawan-kawan mensintesis partikel nano YBCO dengan metode *citrate-gel*, dan diperoleh ukuran partikel (butiran) sekitar 0,1  $\mu\text{m}$ . Dari hasil karakterisasi XRD, partikel nano YBCO memperlihatkan struktur ortorombik dengan parameter kisi  $a$  (3,829  $\text{\AA}$ ),  $b$  (3,874  $\text{\AA}$ ) dan  $c$  (11,670  $\text{\AA}$ ). Partikel nano YBCO memperlihatkan sifat diamagnetik dengan suhu kritis 91 K dan sifat feromagnetik pada suhu ruang dengan koersivitas sekitar 200 Oe.

Satu hal yang perlu dicatat bahwa fenomena feromagnetik pada suhu ruang dan sifat superkonduktor adalah berlawanan (*antagonistic*). Rao dan kawan-kawan

memprediksi bahwa munculnya sifat feromagnetik dalam partikel nano disebabkan oleh momen magnetik yang muncul dari kekosongan oksigen pada permukaan partikel nano (C.D. Pemmaraju 2005). Sifat feromagnetik dalam bahan padatan seperti  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan  $\text{CeO}_2$  muncul dari interaksi kolektif dari momen magnetik atom atau ion. Magnetik atom atau ion dalam bahan diatur dalam kisi periodik dan momennya berinteraksi melalui perubahan medan molekul. Dan telah diketahui pula bahwa partikel nano dari bahan magnetik mempunyai sifat berbeda dengan bahan padatan (*bulk*) yang dipengaruhi oleh *finite size* (R.H. Kodama 1997).

Dari uraian yang telah disampaikan di atas, penelitian superkonduktor RE-123 tersebut lebih banyak difokuskan pada RE tunggal (Nd-123, Eu-123, Gd-123) dan kombinasi tiga RE ( $\text{Nd}_{0,33}\text{E}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ), sedangkan kombinasi dua RE masih jarang dilakukan. Oleh karena itu, pada penelitian ini dibuat sampel superkonduktor RE-123 dengan semua kombinasi yang mungkin, yaitu kombinasi satu, dua dan tiga RE. Jadi ada tambahan pada kombinasi dua RE dengan komposisi molar yang sama yaitu  $\text{Nd}_{0,5}\text{Eu}_{0,5}$ -123,  $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}$ -123,  $\text{Eu}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}$ -123). Pada kasus nano partikel, pengamatan sifat feromagnetik bahan superkonduktor yang telah dilakukan masih terbatas pada bahan non magnetik, sedangkan pada penelitian ini digunakan bahan-bahan magnetik (RE).

## BAB 3

### SINTESIS SUPERKONDUKTOR REBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>

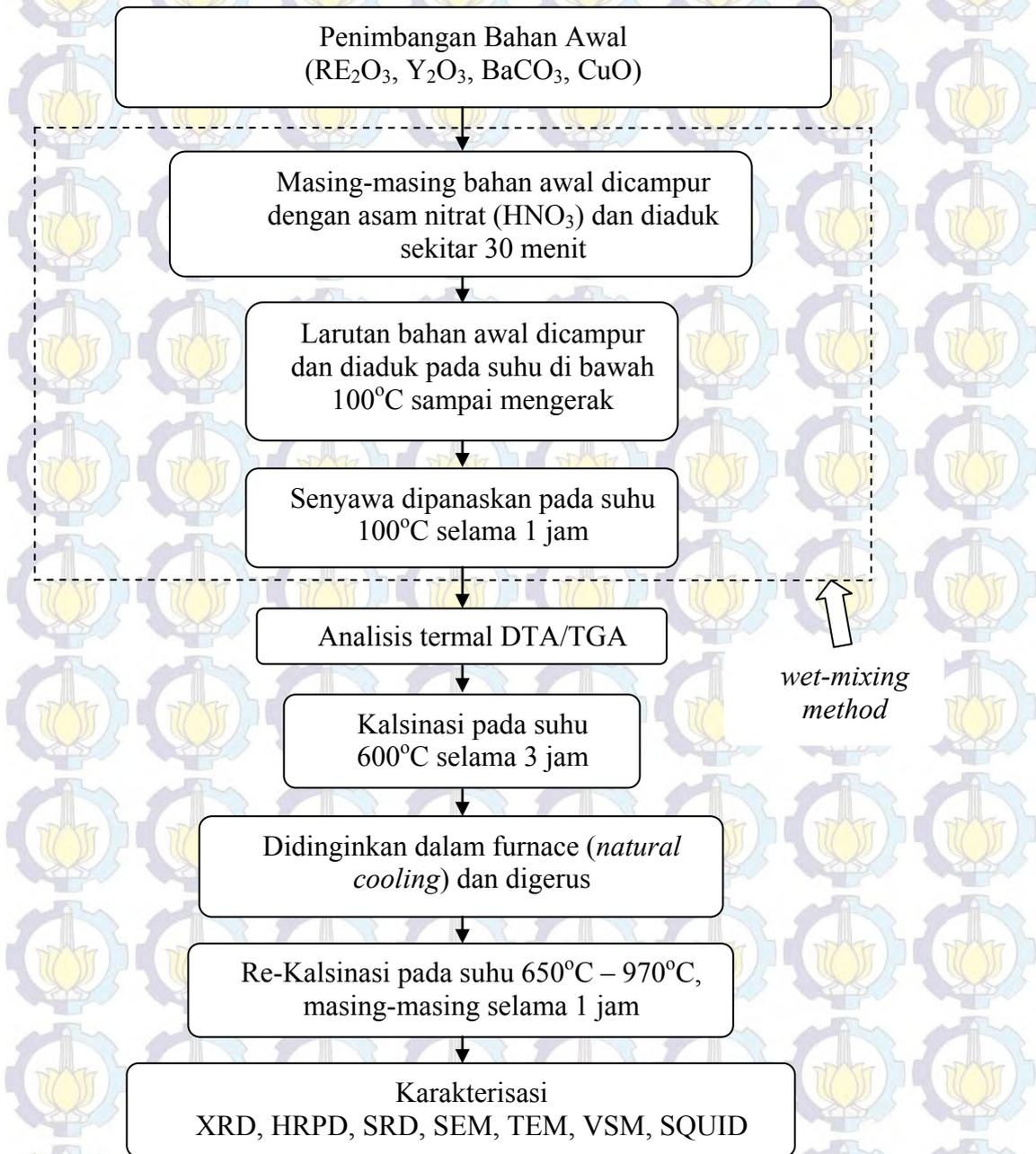
Berbagai metode dalam proses sintesis superkonduktor REBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> telah dilakukan seperti telah dijelaskan pada bab pendahuluan, diantaranya adalah metode *top-seeded melt growth* (TSMG) (S. Haindl 2005; N. Hari 2006; Y. Shi 2006). Metode TSMG memerlukan suhu yang tinggi untuk proses pelelehan dan *seed* (benih) sebagai umpan untuk menghasilkan kristal tunggal dalam ukuran besar. Untuk sintesis dengan metoda pelelehan (*melt-textured*) telah dilaporkan oleh Sakai dan Nakamura (N. Sakai 2007; Y. Nakamura 2007), juga diperlukan suhu tinggi untuk proses pelelehan. Koblishka dan Dai membuat sample RE-123 dengan metode *oxygen-controlled melt growth* (OCMG) (M. R. Koblishka 2000; J.Q. Dai 2004), yang memerlukan suhu tinggi dan kontrol oksigen. Kramer dan kawan-kawan (M.J. Kramer 1994) mensintesis superkonduktor Nd-123 dengan metode *solid state reaction* dan kalsinasi pada suhu 890°C selama 24 jam, perlakuan sinter pada 1050°C selama 24 jam, perlakuan anil pada suhu 950°C selama 24 jam dan 450°C selama 24 jam. Secara umum proses sintesis pada penelitian-penelitian tersebut menggunakan suhu tinggi dan waktu sinter serta suhu anil yang lama.

Pada penelitian ini dilakukan proses sintesis superkonduktor REBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> dengan *wet-mixing method* dan *nitric acid* (HNO<sub>3</sub>) sebagai *digest agent*, agar proses sintesis tidak memerlukan suhu tinggi dan pemanasan yang lama.

Proses sintesis meliputi beberapa proses. *Pertama* dilakukan sintesis senyawa NdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> dengan suhu re-kalsinasi ( $T_{rc}$ ) pada 650-970°C selama satu jam. Proses *kedua* dilakukan sintesis superkonduktor Nd<sub>0,5</sub>Gd<sub>0,5</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> dan Nd<sub>0,33</sub>Eu<sub>0,33</sub>Gd<sub>0,33</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> dengan variasi  $T_{rc}$  pada 920-960°C selama satu jam. Proses *ketiga* dilakukan sintesis senyawa Nd<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> dengan variasi x dari 0 sampai 1 dengan  $T_{rc}$  pada 970°C selama sepuluh jam dan proses *keempat* dilakukan sintesis senyawa REBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> (RE=Nd, Eu, Gd) dengan  $T_{rc}$  pada 970°C selama sepuluh jam.

### 3.1. Proses Sintesis

Semua sampel pada penelitian ini disintesis dengan *wet-mixing method* dan asam nitrat ( $\text{HNO}_3$ ) sebagai *digest agent*. Proses sintesis semua sampel sama dan yang membedakan adalah variasi suhu re-kalsinasi ( $T_{rc}$ ). Proses sintesis secara lengkap, mulai dari penimbangan bahan, proses *wet-mixing method*, dan proses pemanasan diperlihatkan pada Gambar 3.1.



Gambar 3.1. Diagram alir proses sintesis superkonduktor  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (RE = Nd, Eu, Gd)

### 3.1.1. Pemilihan bahan

Secara garis besar penelitian ini bertujuan untuk memperoleh bahan dengan homogenitas, suhu kritis, rapat arus, dan medan magnetik bahan yang tinggi. Oleh karena itu pada penelitian ini dipilih unsur tanah jarang (*rare earth*) seperti Nd, Eu dan Gd yang digunakan untuk substitusi Y pada superkonduktor sistem  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (YBCO atau Y-123). Unsur-unsur tersebut dipilih karena merupakan bahan yang bersifat magnetik. Jari-jari ion  $\text{Nd}^{3+}$  (112,3 pm),  $\text{Eu}^{3+}$  (108,7 pm) dan  $\text{Gd}^{3+}$  (107,8 pm) dapat mensubstitusi ion  $\text{Y}^{3+}$  (104 pm) karena memiliki perbedaan jari-jari ion yang tidak terlalu signifikan. Sintesis bahan  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (RE = Nd, Eu, Gd), dilakukan dengan *wet-mixing method*, menggunakan bahan-bahan  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  (99,9 %),  $\text{Gd}_2\text{O}_3$  (99,9 %),  $\text{Eu}_2\text{O}_3$  (99,9 %),  $\text{BaCO}_3$  (99,9 %),  $\text{CuO}$  (99,9 %) dan  $\text{HNO}_3$  (asam nitrat) sebagai *digest agent*. Pemilihan asam nitrat sebagai pelarut, karena solubilitas bahan *rare earth* dalam  $\text{HNO}_3$  sangat tinggi. Dengan solubilitas yang tinggi diharapkan bahan-bahan awal tersebut dapat larut dengan baik, sehingga ikatan yang terjadi bukan lagi ikatan antar atom, akan tetapi ikatan antar ion. Hal tersebut memungkinkan untuk menghasilkan sampel dengan homogenitas tinggi.

### 3.1.2. Proses *wet-mixing method*

Bahan awal penyusun superkonduktor  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (RE = Nd, Eu, Gd), ditimbang sesuai dengan komposisi molar senyawa. Komposisi molar diubah menjadi perbandingan berat yang disesuaikan dengan keperluan karakterisasi. Berat sampel yang dibutuhkan untuk karakterisasi XRD dan SRD sekitar 1-2 gram, sedangkan untuk karakterisasi HRPD dibutuhkan sampel minimum 10 gram. Ketepatan, ketelitian dan kesterilan pada saat proses penimbangan merupakan salah satu parameter yang menentukan keberhasilan proses sintesis superkonduktor (Y. Li 2004). Setelah dilakukan penimbangan bahan awal yang digunakan untuk pembentukan senyawa superkonduktor, maka selanjutnya dilakukan proses sintesis dengan *wet-mixing method*.

Proses sintesis dengan *wet-mixing method* dapat diuraikan sebagai berikut :

- a. Masing-masing senyawa  $\text{RE}_2\text{O}_3$  (RE = Nd, Eu, Gd),  $\text{BaCO}_3$  dan  $\text{CuO}$  dicampur dengan  $\text{HNO}_3$  serta diaduk menggunakan *magnetic stirrer* pada suhu  $50^\circ\text{C}$  sampai diperoleh larutan  $\text{RE}(\text{NO}_3)_3$ ,  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  dan  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$  yang homogen. Penggunaan

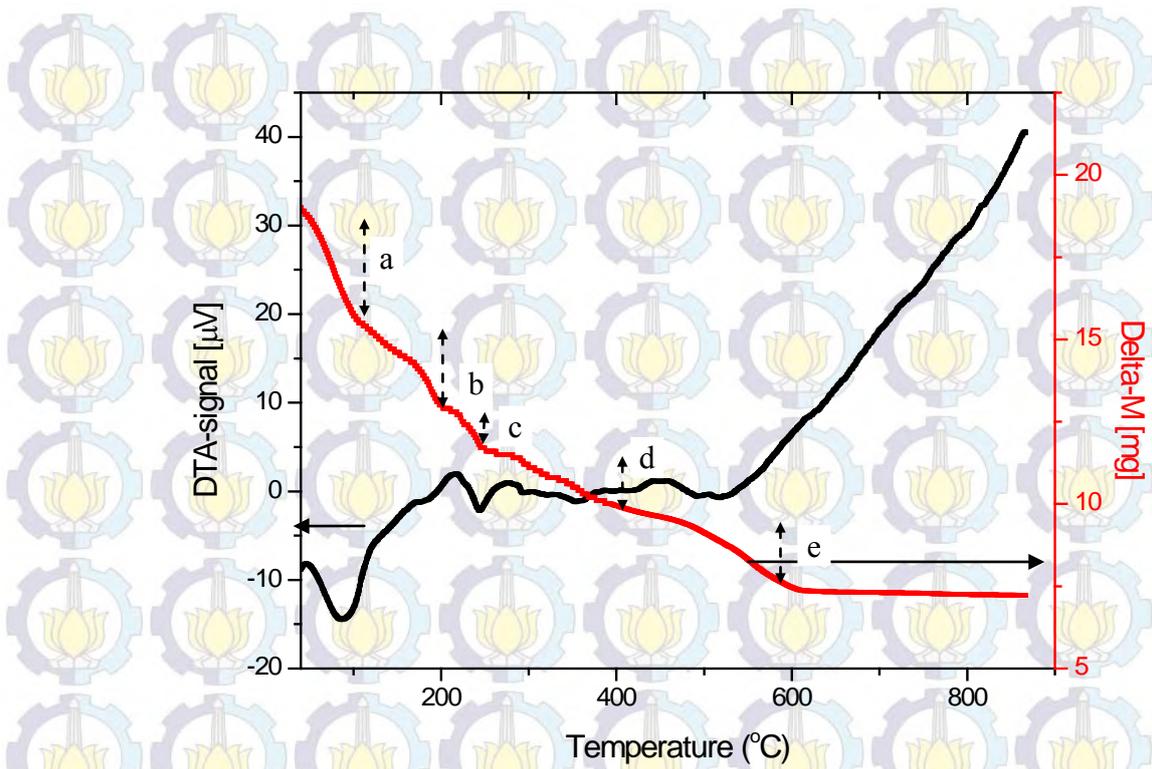
suhu setinggi 50°C diharapkan dapat mempercepat proses pelarutan untuk memperoleh larutan homogen. Pada penelitian ini, untuk memperoleh larutan homogen diperlukan waktu sekitar 30 menit.

- b. Larutan  $\text{RE}(\text{NO}_3)_3$ ,  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  dan  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$  tersebut diaduk dengan *magnetic stirrer* dan dipanaskan secara perlahan hingga mencapai suhu di bawah 100°C sampai mengeras.
- c. Senyawa dalam bentuk kerak dipanaskan pada suhu 100°C selama satu jam untuk menghilangkan kandungan air yang masih terdapat dalam senyawa, sehingga diperoleh senyawa kering.

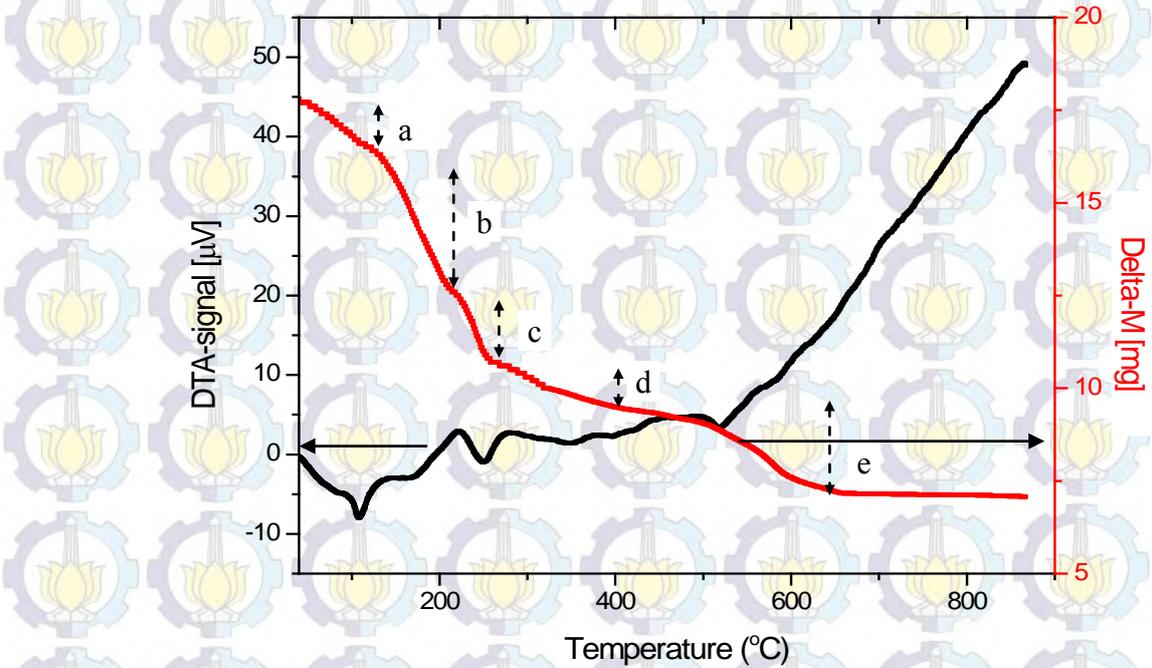
### 3.2. Analisis Termal

Terhadap senyawa yang sudah diproses melalui tahapan *wet-mixing method* seperti yang telah dibahas pada sub-bab 3.1.2, terlebih dahulu dilakukan analisis *thermal gravimetry analyzer* (TGA) dan *differential thermal analyzer* (DTA) agar diperoleh suhu pemanasan yang tepat dan efisien. Kurva TGA memberikan informasi perubahan massa selama proses pemanasan, sedangkan kurva DTA memberikan informasi mengenai suhu pada saat terjadi perubahan massa. Kurva DTA dan TGA (termogram) sampel  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan  $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  masing-masing diperlihatkan pada Gambar 3.2 dan 3.3.

Kurva DTA dan TGA sampel  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan  $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  memperlihatkan 5 (lima) tahapan pengurangan massa sampel dari suhu ruang sampai suhu 900°C seperti diperlihatkan pada Tabel 3.1.



Gambar 3.2. Termogram sampel  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$



Gambar 3.3. Termogram sampel  $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Tabel 3.1. Pengurangan massa sampel  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan  $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dari hasil karakterisasi TGA

Sampel	Massa awal (mg)	Posisi proses	Suhu ( $^{\circ}\text{C}$ )	Pengurangan massa (%)	Massa akhir (mg)
$\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	18,75	a	37-110	19,24	15,14
		b	110-200	13,58	13,08
		c	200-220	6,67	12,21
		d	220-400	7,40	11,31
		e	400-600	12,05	9,95
$\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	18,02	a	37-110	5,57	17,02
		b	110-200	26,26	12,55
		c	200-220	5,19	11,90
		d	220-400	6,68	11,11
		e	400-650	17,00	9,22

Termogram memperlihatkan pola proses penguapan sampel  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  yang ditandai oleh kehilangan berat dari prekursor. Proses kehilangan berat terlihat bervariasi, dan secara garis besar tercatat sebanyak lima proses kehilangan berat karena penguapan, yaitu :

- terjadi pada interval suhu dari suhu ruang sampai suhu  $110^{\circ}\text{C}$ , dimana terdapat lembah endotermis yang merupakan ciri dari penguapan air fisis. Air fisis berfungsi sebagai pelarut mempunyai titik didih  $100^{\circ}\text{C}$  dan dapat menguap pada suhu di atas titik didihnya. Pada proses tersebut terjadi penurunan berat sampel sekitar 19,24 % seperti terlihat pada Tabel 3.1.
- proses kedua pada interval suhu  $110-220^{\circ}\text{C}$ , terjadi pelepasan gas hidrogen ( $\text{H}_2$ ) dan karbondioksida ( $\text{CO}_2$ ). Hal tersebut ditandai dengan penurunan berat sampel sekitar 13,58 %.

c. pada interval suhu 220-600°C berat sampel berkurang sekitar 26,12 % yang mengindikasikan adanya proses dekomposisi molekul-molekul nitrat menjadi NO dan NO<sub>2</sub>.

d. pada interval suhu di atas 600°C tidak terdeteksi penurunan berat sampel.

Secara keseluruhan penurunan berat sampel NdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> yang diakibatkan pemanasan dari suhu ruang sampai suhu 900°C terjadi sekitar 58,94 %, yaitu dari 18,75 gr (berat awal) menjadi 9,95 gr (berat akhir).

Karakterisasi DTA/TGA juga dilakukan pada sampel GdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> yang telah disintesis dengan proses yang sama dengan sampel NdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>. Penurunan berat sampel GdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> selama pemanasan dapat diuraikan sebagai berikut :

a. pada interval suhu dari suhu ruang sampai suhu 110°C terjadi penurunan berat sampel sebesar 5,6 % yang merupakan ciri dari penguapan air fisis

b. pada interval suhu 110-200°C terjadi penurunan berat sampel sebesar 26,3 %; yang merupakan pelepasan gas hidrogen (H<sub>2</sub>) dan karbondioksida (CO<sub>2</sub>)

c. pada interval suhu 200-650°C terjadi penurunan berat sampel sebesar 28,87 %, yang merupakan proses dekomposisi molekul-molekul nitrat menjadi NO dan NO<sub>2</sub>.

d. di atas suhu 650°C tidak terdeteksi adanya penurunan berat sampel.

Secara keseluruhan penurunan berat sampel GdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> yang diakibatkan pemanasan dari suhu ruang sampai suhu 900°C terjadi sekitar 60,7 %, yaitu dari 18,02 gr (berat awal ) menjadi 9,22 gr (berat akhir).

Dari hasil analisis DTA/TGA yang telah diuraikan di atas, proses pengurangan berat sampel yang diakibatkan pemanasan dari suhu ruang sampai suhu 900°C untuk sampel NdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> hampir sama dengan yang terjadi pada sampel GdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, akan tetapi terdapat perbedaan pada suhu pembentukan dari kedua senyawa tersebut. Penurunan berat pada sampel NdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> sudah tidak terdeteksi di atas suhu 600°C, sedangkan pada sampel GdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> tidak terdeteksi penurunan berat sampel pada suhu di atas 650°C.

### **3.3. Proses Kalsinasi dan Re-Kalsinasi**

Berdasarkan hasil analisis DTA dan TGA pada sub bab 3.2, maka pada penelitian ini proses kalsinasi dilakukan pada suhu 600°C, karena pada suhu tersebut mulai terjadi pembentukan fasa NdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>. Proses kalsinasi dilakukan selama 3 jam

dengan harapan fasa impuritas dapat diminimalisir. Karena terdapat perbedaan suhu pembentukan fasa  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $600^\circ\text{C}$ ) dan fasa  $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $650^\circ\text{C}$ ), maka pada penelitian ini dilakukan re-kalsinasi ( $T_{\text{re}}$ ) dengan suhu yang bervariasi untuk memperoleh suhu optimal dalam menghasilkan sampel dengan kemurnian tinggi.

Proses re-kalsinasi dilakukan pada suhu yang berbeda untuk masing-masing sampel yaitu :

- sampel  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dikalsinasi pada suhu  $600^\circ\text{C}$  selama tiga jam dan re-kalsinasi pada suhu 650, 700, 750, 800, 850, 900, 920, 940, 960 dan  $970^\circ\text{C}$  selama satu jam.
- sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x=0-1$ ) dikalsinasi pada suhu  $600^\circ\text{C}$  selama tiga jam dan re-kalsinasi pada suhu  $970^\circ\text{C}$  selama sepuluh jam.
- sampel  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $\text{RE}=\text{Nd, Eu, Gd}$ ) dengan satu, dua dan tiga kombinasi RE dikalsinasi pada suhu  $600^\circ\text{C}$  selama tiga jam dan re-kalsinasi pada suhu  $970^\circ\text{C}$  selama sepuluh jam.

### 3.4. Karakterisasi

Sampel yang telah berhasil dibuat, diuji dan dilakukan karakterisasi XRD, SEM dan TEM.

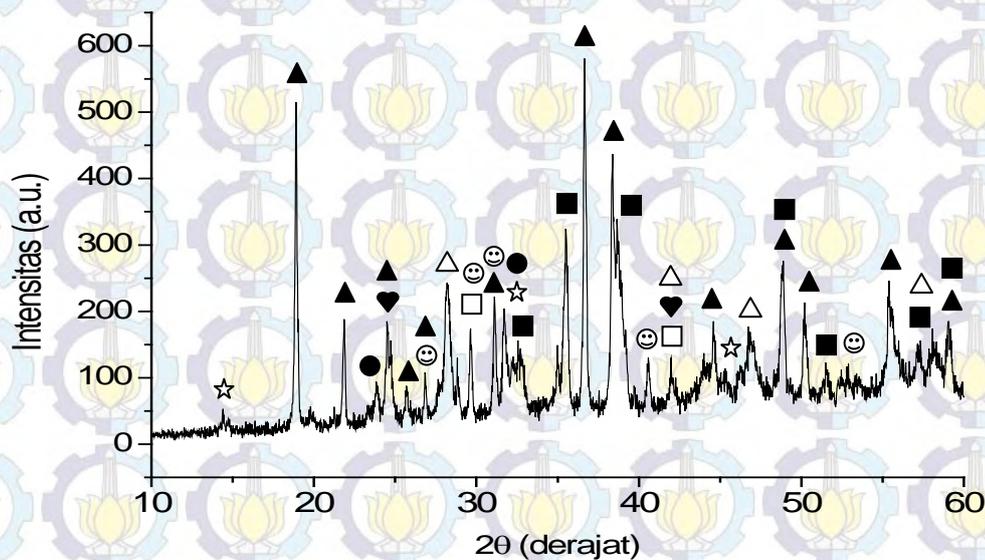
- Karakterisasi *X-ray diffraction* (XRD) untuk mengetahui tingkat keberhasilan terbentuknya fasa kristal yang diharapkan dan mengetahui perubahan pola difraktogramnya. Peralatan *X-ray diffractometer* menggunakan *Philips Type Expert*,  $\text{CuK}\alpha$ , dengan panjang gelombang  $1,54056 \text{ \AA}$  ( $K-\alpha_1$ ) dan  $1,54439 \text{ \AA}$  ( $K-\alpha_2$ ), diukur pada sudut  $2\theta$  dari  $10$  sampai  $90^\circ$  dengan peningkatan sudut  $0,02^\circ$ .
- Karakterisasi *scanning electron microscopy* (SEM) untuk mengetahui morfologi (bentuk, posisi dan ukuran butiran grain) sampel dalam skala mikrometer.
- Karakterisasi *transmission electron microscopy* (TEM) untuk mengetahui morfologi (bentuk, posisi dan ukuran butiran grain) sampel dalam skala nanometer.

### 3.5. Identifikasi Fasa

#### 3.5.1. Pola difraksi sinar-X sampel $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ( $T_{\text{re}} = 650-900^\circ$ )

Senyawa  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  yang sudah berhasil disintesis dengan *wet-mixing method* dan suhu kalsinasi  $600^\circ\text{C}$  selama tiga jam, dilakukan karakterisasi XRD. Untuk

memastikan fasa yang terbentuk, maka dilakukan analisis difraktogram, yaitu proses pencocokan puncak difraksi dengan mengacu pada referensi *database* puncak, PDF (*powder diffraction file*) menggunakan program *Match*. Proses pencocokan puncak difraksi fasa Nd-123 untuk sampel dengan suhu kalsinasi 600°C ditunjukkan pada Gambar 3.4.



Gambar 3.4. Pola difraksi sinar-X ( $CuK\alpha$  radiation) senyawa Nd-123 dengan proses *mixing* selama 30 menit dan suhu kalsinasi 600°C selama 3 jam. Ket : (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol :  $\blacktriangle$  ( $Ba(NO_3)_2$ ),  $\blacksquare$  ( $CuO$ ),  $\bullet$  ( $Nd_2CuO_4$ ),  $\heartsuit$  ( $BaCO_3$ ),  $\square$  ( $BaNd_2O_4$ ),  $\Delta$  ( $BaCuO_2$ ),  $\odot$  ( $Nd_2O_3$ ), \* ( $(Nd_{0,925}Ba_{0,075})_2CuO_{4-x}$ )

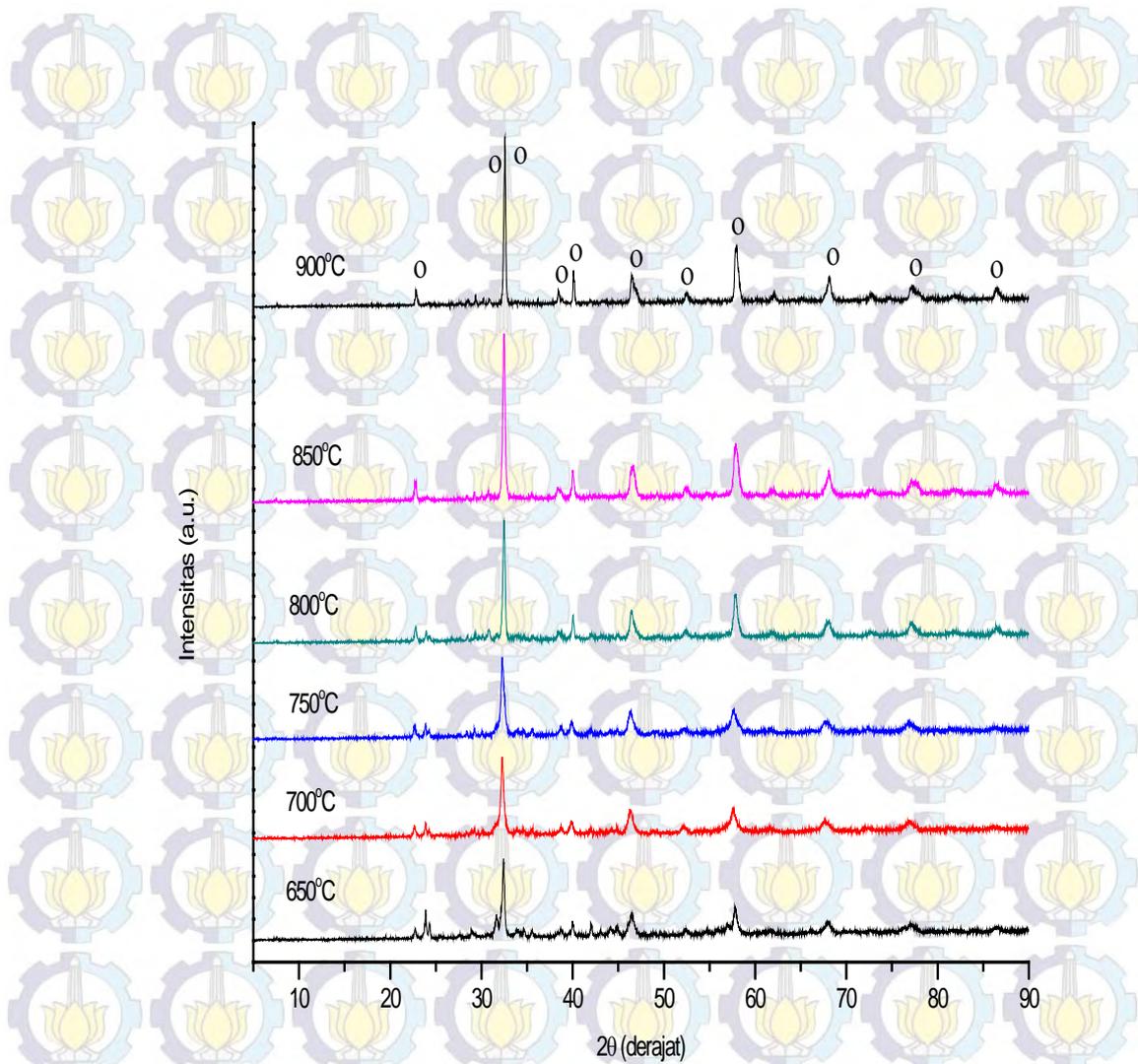
Dari hasil pencocokan puncak difraksi, terdeteksi fasa impuritas berupa  $Ba(NO_3)_2$ ,  $CuO$ ,  $Nd_2CuO_4$ ,  $BaCO_3$ ,  $BaNd_2O_4$ ,  $BaCuO_2$ ,  $(Nd_{0,925}Ba_{0,075})_2CuO_{4-x}$ , sedangkan fasa Nd-123 belum terbentuk. Karena fasa Nd-123 belum terbentuk pada suhu kalsinasi 600°C, maka dilakukan kalsinasi ulang (*re-kalsinasi*) dengan variasi suhu dari 650 sampai 900°C.

Hasil karakterisasi XRD sampel Nd-123 dengan suhu *re-kalsinasi* dari 650-900°C diperlihatkan pada Gambar 3.5. Proses pencocokan puncak difraksi fasa Nd-123 dengan suhu *re-kalsinasi* dari 650 sampai 900°C mengacu pada dua PDF, yaitu PDF nomor 045-0152 (R. Shpanchenko 1988) dengan komposisi kimia  $NdBa_2Cu_3O_{7-x}$

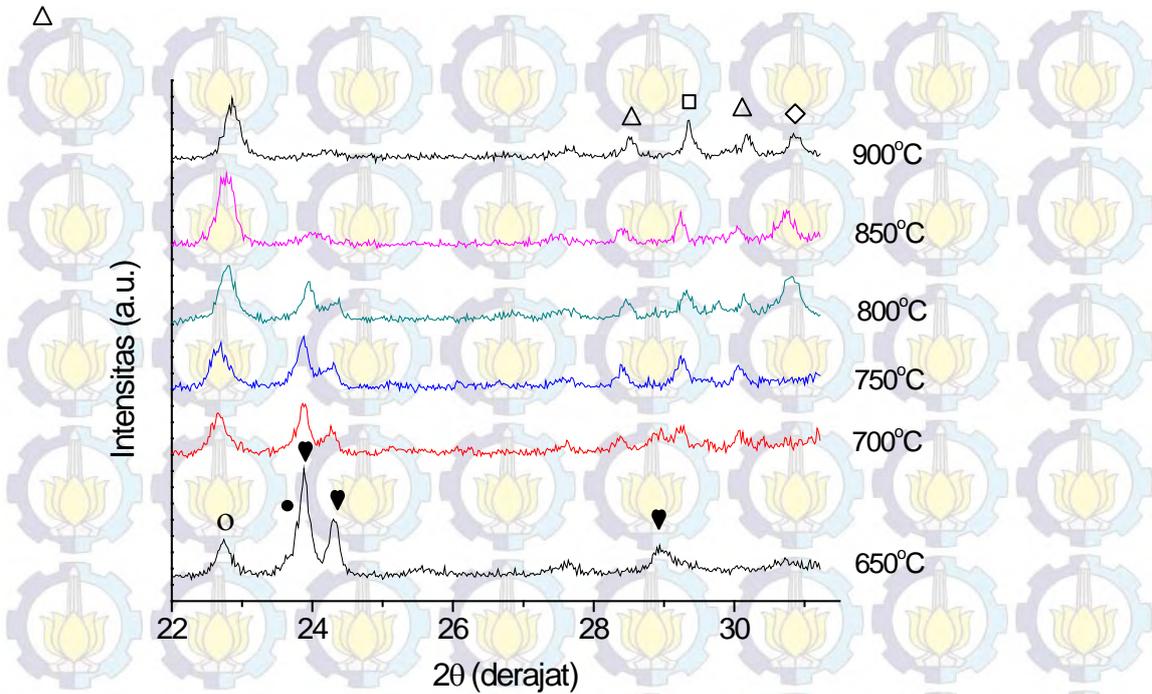
(*Barium Copper Neodymium Oxide*), struktur kristal ortorombik dan PDF nomor 046-0229 (E. Antipov 1994) dengan komposisi kimia  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,88}$ , struktur kristal ortorombik dan grup ruang Pmmm.

Dari hasil pencocokan pola difraksi, juga terdeteksi fasa impuritas berupa  $\text{BaCO}_3$ ,  $\text{BaNd}_2\text{O}_4$ ,  $\text{Nd}_2\text{BaCuO}_5$ ,  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$  dan  $\text{BaCuO}_2$  untuk sampel Nd-123 pada sudut  $2\theta$  dari 22 sampai  $31^\circ$ , seperti terlihat pada Gambar 3.6. Sedangkan pada sudut  $2\theta$  dari 32 sampai  $60^\circ$ , terdeteksi fasa impuritas berupa  $\text{BaCO}_3$ ,  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$  dan  $\text{CuO}$  yang diperlihatkan pada Gambar 3.7.

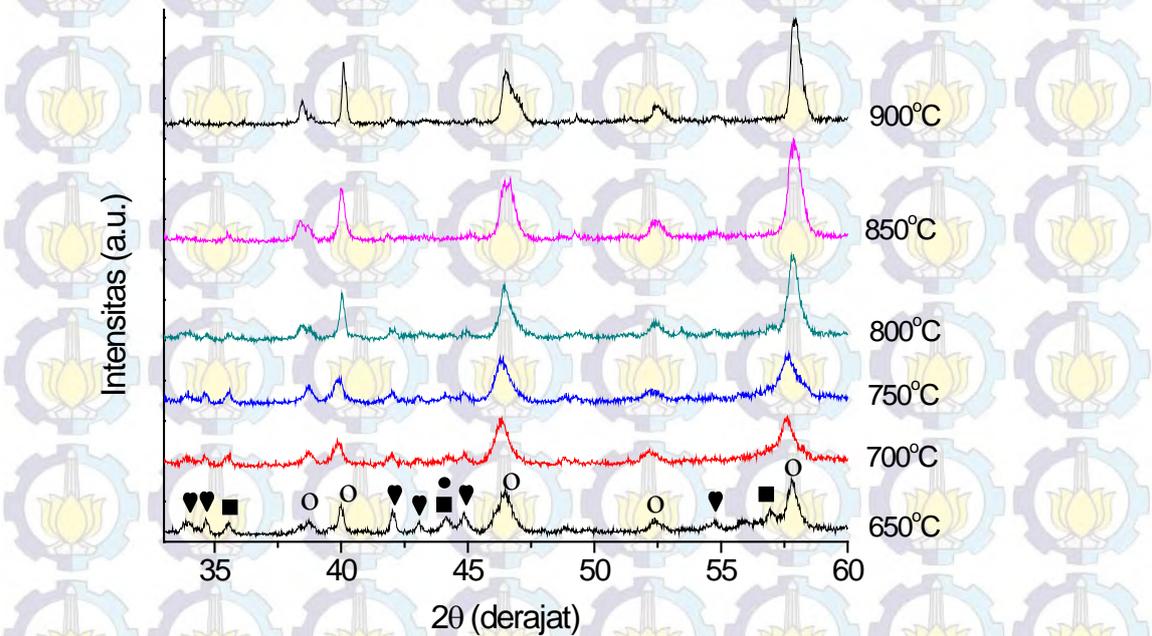
Pencocokan puncak difraksi untuk puncak impuritas  $\text{BaCO}_3$  (*Barium Carbonat*) (Gambar 3.5, 3.6, 3.7) mengacu pada referensi PDF 045-1471 (A. Kern 1993) yang mempunyai sistem ortorombik, grup ruang Pnma (62) dan parameter kisi a (6,433 Å), b (5,315 Å), c (8,904 Å). Pencocokan puncak difraksi untuk puncak impuritas  $\text{CuNd}_2\text{O}_4$  mengacu pada referensi PDF 039-1390 (N. Wong 1988) yang mempunyai sistem tetragonal, grup ruang  $I4/mmm$  (139) dan parameter kisi a (3,944 Å), c (12,169 Å). Untuk puncak impuritas  $\text{BaCuO}_2$  mengacu pada PDF 038-1402 (N. Wong 1987) yang mempunyai sistem kubik, grup ruang  $Im\bar{3}m$  (229) dan parameter kisi 18,2932 Å. Pencocokan impuritas  $\text{BaNd}_2\text{O}_4$  mengacu pada PDF 042-1499 (N. Wong 1991), sistem ortorombik, grup ruang Pnam(62) dan parameter kisi a (10,585 Å), b (12,45 Å), c (3,6039 Å). Sedangkan pencocokan impuritas  $\text{Nd}_2\text{BaCuO}_5$  mengacu pada PDF 042-0497 dengan sistem tetragonal, grup ruang  $P4/m\bar{b}m$  (127) dan parameter kisi a (6,6977 Å), b (5,8209 Å).



Gambar 3.5. Pola difraksi sinar-X ( $CuK\alpha$  radiation) sampel Nd-123 yang disintesis melalui proses *mixing* selama 30 menit dan variasi suhu re-kalsinasi selama 1 jam. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : o (Nd-123)



Gambar 3.6. Fasa impuritas pada sampel Nd-123 yang disintesis melalui proses *mixing* selama 30 menit dan variasi suhu re-kalsinasi selama 1 jam pada sudut  $2\theta$  dari 22 sampai 31°. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : o (Nd-123), ♥ (BaCO<sub>3</sub>), Δ (BaCuO<sub>2</sub>), □ (BaNd<sub>2</sub>O<sub>4</sub>), ◇ (Nd<sub>2</sub>BaCuO<sub>5</sub>), ● (Nd<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub>)



Gambar 3.7. Fasa impuritas pada sampel Nd-123 yang disintesis melalui proses *mixing* selama 30 menit dan variasi suhu re-kalsinasi selama 1 jam pada sudut  $2\theta$  dari 32 sampai 60°. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : o (Nd-123), ♥ (BaCO<sub>3</sub>), ■ (CuO), ● (Nd<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub>)

Secara umum pola difraksi sinar-X yang dihasilkan oleh masing-masing sampel dengan suhu re-kalsinasi dari 650 sampai 900°C hampir sama, yang mengindikasikan bahwa pembentukan kristal Nd-123 mulai terjadi pada  $T_{rc}$  di atas 650°C. Pengamatan lebih lanjut memperlihatkan bahwa intensitas puncak fasa Nd-123 semakin besar dengan penambahan suhu re-kalsinasi (Gambar 3.5), dimana intensitas puncak terendah sekitar 953 cps terdeteksi pada sampel Nd-123 dengan suhu re-kalsinasi 650°C, sedangkan intensitas puncak tertinggi sekitar 980 cps terdeteksi pada sampel Nd-123 dengan suhu re-kalsinasi 900°C. Penambahan suhu re-kalsinasi dari 650 sampai 900°C dapat meningkatkan intensitas fasa Nd-123 dan sekaligus menurunkan intensitas fasa impuritas  $BaCO_3$ ,  $Nd_2CuO_4$ ,  $Nd_2BaO_4$ , serta meningkatkan intensitas fasa impuritas  $BaCuO_2$ , seperti terlihat pada Gambar 3.5, 3.6 dan 3.7. Fasa impuritas  $Nd_2BaCuO_5$  tidak muncul pada suhu 650 sampai 750°C, tetapi terdeteksi pada suhu 800°C dengan intensitas cukup tinggi, kemudian menurun sejalan dengan peningkatan suhu re-kalsinasi.

Untuk mengetahui prosentase fasa Nd-123 yang terdapat dalam sampel, maka dilakukan perhitungan harga fraksi berat. Fraksi berat (FB) Nd-123 dan fasa-fasa impuritas diperoleh dari hasil *refinement* menggunakan program *Rietica*. Proses *refinement* dilakukan pada *background*, *sample displacement*, faktor skala, parameter pelebaran puncak dan ukuran kristal. Sedangkan untuk parameter kisi, tidak semua sampel di *refine* karena beberapa *refinement* akan menjadi *unstable*. Dengan pertimbangan bahwa tujuan *refinement* ini adalah untuk menghitung prosentase berat (bukan menghitung parameter kisi), maka parameter-parameter yang mengakibatkan *unstable* tidak di *refine*. Hasil perhitungan fraksi berat diperlihatkan pada Tabel 3.2. Dari tabel terlihat bahwa penambahan suhu re-kalsinasi dari 650 sampai 900°C mampu meningkatkan harga fraksi berat fasa Nd-123 dari 84,3 sampai 92,4 % dan fasa  $BaCuO_2$  dari 0,4 sampai 4,2 %. Hal tersebut mengindikasikan bahwa pertumbuhan kristal Nd-123 dan impuritas  $BaCuO_2$  semakin meningkat dengan bertambahnya energi panas yang diberikan. Penambahan suhu re-kalsinasi juga dapat menurunkan harga fraksi berat fasa impuritas  $BaCO_3$ ,  $CuO$ ,  $Nd_2CuO_4$  seperti diperlihatkan pada Tabel 3.2.

Tabel 3.2. Nilai prosentase fraksi berat fasa  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan fasa impuritas pada suhu re-kalsinasi 650-900°C

$T_{rc}$ (°C)	Fraksi Berat (%)						
	Nd-123	$\text{BaCO}_3$	$\text{BaCuO}_2$	CuO	$\text{Nd}_2\text{CuO}_4$	$\text{Nd}_2\text{BaCuO}_5$	$\text{Nd}_2\text{BaO}_4$
650	84,3	13,2	0,4	1,7	0,4	-	-
700	86,2	10,4	0,9	1,5	0,2	-	0,8
750	87,6	8,4	1,6	1,2	0,1	-	1,1
800	89,2	5,9	2,4	0,7	-	0,6	1,2
850	90,8	4,2	3,1	0,3	-	0,5	1,1
900	92,4	2,0	4,2	0,1	-	0,2	1,1

Kemunculan fasa impuritas  $\text{Nd}_2\text{BaCuO}_5$  (Y-211) dapat menimbulkan cacat kristal yang mengakibatkan munculnya gaya *pinning* yang akan menghalangi pergerakan vorteks. Dalam superkonduktor sistem Y-123 maupun RE-123, terdapat lapisan-lapisan yaitu blok *reservoir* muatan dan blok aktif (lapisan superkonduksi). Dari aspek mekanika fluksoid blok *reservoir* muatan yang memisahkan dua blok aktif terdekat berperan sebagai faktor yang menentukan besar kecilnya efek *pinning* dalam bahan superkonduktor. Lemahnya mekanisme *pinning* akan berdampak buruk pada sifat transpor dan magnetik bahan superkonduktor.

Besaran yang digunakan untuk menyatakan kemampuan bahan dalam mencegah pergerakan vorteks disebut gaya *pinning* ( $F_p$ ), yaitu gaya Lorentz maksimum yang dapat ditahan oleh bahan tanpa menimbulkan disipasi, atau gaya minimum yang diperlukan untuk menghalangi pergerakan garis fluks vorteks. Disipasi maksimum arus bebas atau yang dikenal dengan rapat arus kritis ( $J_c$ ) didefinisikan sebagai :

$$J_c = \frac{F_p}{B} \quad (3-1)$$

dimana B menyatakan besar induksi magnetik yang diberikan. Untuk menghindari terjadinya disipasi arus tersebut adalah dengan menghalangi pergerakan garis fluks vorteks yaitu dengan memperbanyak pusat-pusat *pinning* dalam bahan.

Keberadaan fasa Y-211 sangat diharapkan, karena fasa ini dapat berfungsi sebagai pusat *flux pinning*. Fasa Y-211 akan menghambat pergerakan vorteks apabila bahan dialiri arus. Terhambatnya pergerakan vorteks oleh keberadaan fasa Y-211 akan

memperbesar nilai rapat arus kritis bahan. Fasa Y-211 yang merupakan fasa kedua mempunyai struktur kristal yang sama dengan fasa mayor Y-123 yaitu struktur ortorombik dengan valensi Cu berkisar antara  $\text{Cu}^{2+}$  dan  $\text{Cu}^{3+}$ , oleh karena itu fasa Y-211 tidak bersifat superkonduktor, melainkan isolator. Fasa Y-211 yang juga disebut sebagai fasa hijau tidak hanya berfungsi sebagai pusat *flux pinning* dan meningkatkan nilai rapat arus kritis ( $J_c$ ), akan tetapi interaksi antara fasa Y-211 dan Y-123 mampu menghasilkan rerata ukuran kristal yang lebih homogen (M.R. Koblishka 2003). Begitu pentingnya kehadiran fasa Y-211 dalam meningkatkan nilai rapat arus kritis dan homogenitas, maka beberapa peneliti telah melakukan sintesis superkonduktor sistem Y-123 dengan penambahan senyawa Y-211 (M.R. Koblishka 2003; S. Y. Chen 2008).

Fasa Y-211 harus mempunyai ukuran partikel yang homogen dan terdistribusi secara merata dalam sampel, agar dapat berfungsi sebagai pusat *pinning*. Secara teori, sebenarnya fasa Y-211 terbentuk melalui reaksi peritektik. Kalau dilihat dari diagram fasa pembentukan superkonduktor Y-123, fasa Y-211 muncul pada proses sintesis melalui proses pelelehan pada suhu di atas  $1010^\circ\text{C}$ , dengan reaksi kimia :

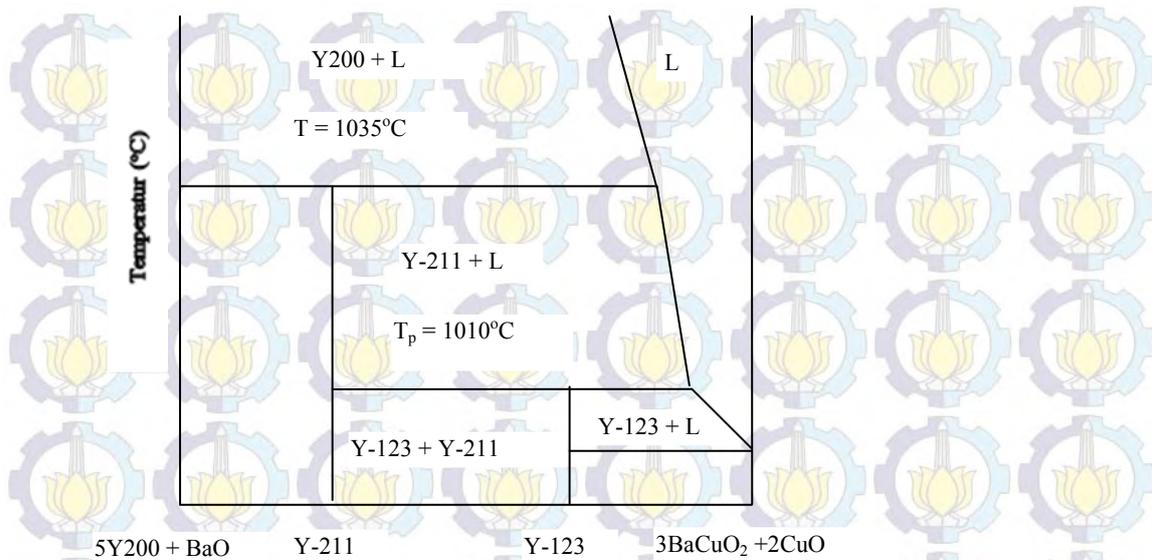


Kemudian pada saat pendinginan sekitar suhu  $1010^\circ\text{C}$ , fasa Y-211 bereaksi dengan fasa *liquid* (cairan) untuk membentuk fasa Y-123 dengan reaksi kimia :



Diagram fasa pembentukan superkonduktor Y-123 diperlihatkan pada Gambar 3.8.

Karena keberadaan fasa impuritas masih terdeteksi dalam sampel dengan suhu re-kalsinasi  $900^\circ\text{C}$ , seperti diperlihatkan pada Tabel 3.2 yaitu fasa  $\text{BaCO}_3$  dengan fraksi berat (FB) 2,0 %,  $\text{BaCuO}_2$  dengan FB 4,2 %,  $\text{CuO}$  dengan FB 0,1 %, fasa  $\text{Nd}_2\text{BaCuO}_5$  dengan FB 0,2 % dan fasa  $\text{Nd}_2\text{BaO}_4$  dengan FB 1,1 %, maka penambahan suhu re-kalsinasi masih perlu dilakukan untuk menurunkan intensitas fasa impuritas tersebut (sub bab 3.5.2).

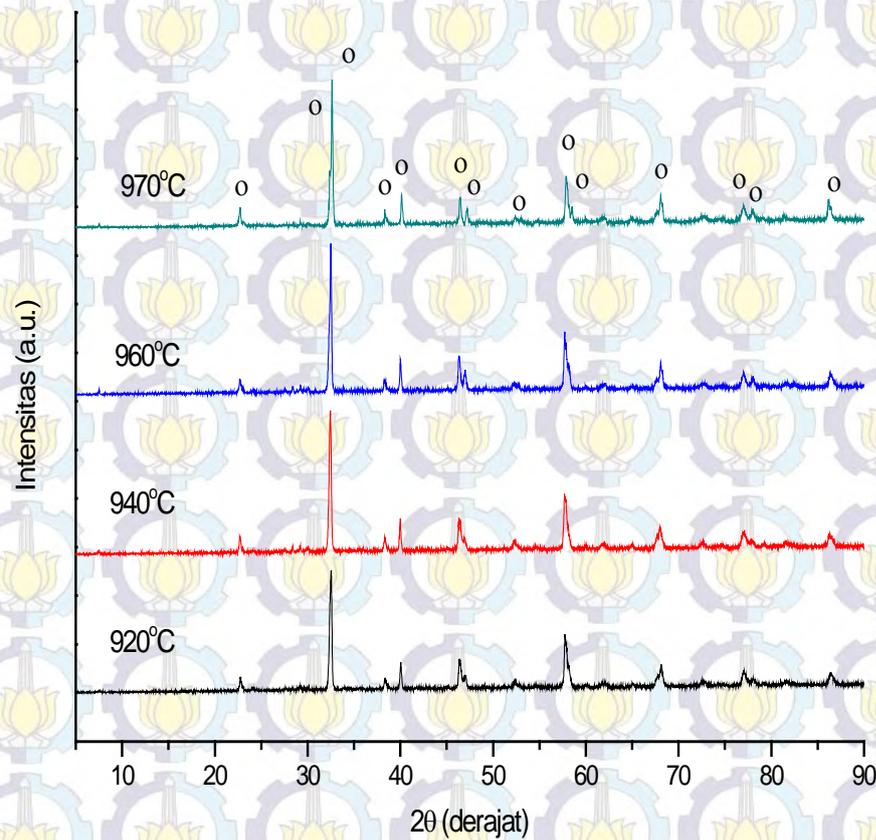


Gambar 3.8. Diagram fasa pembentukan fasa Y-123

### 3.5.2. Pola difraksi sinar-X sampel RE-123 pada $T_{rc} = 920-970^{\circ}\text{C}$

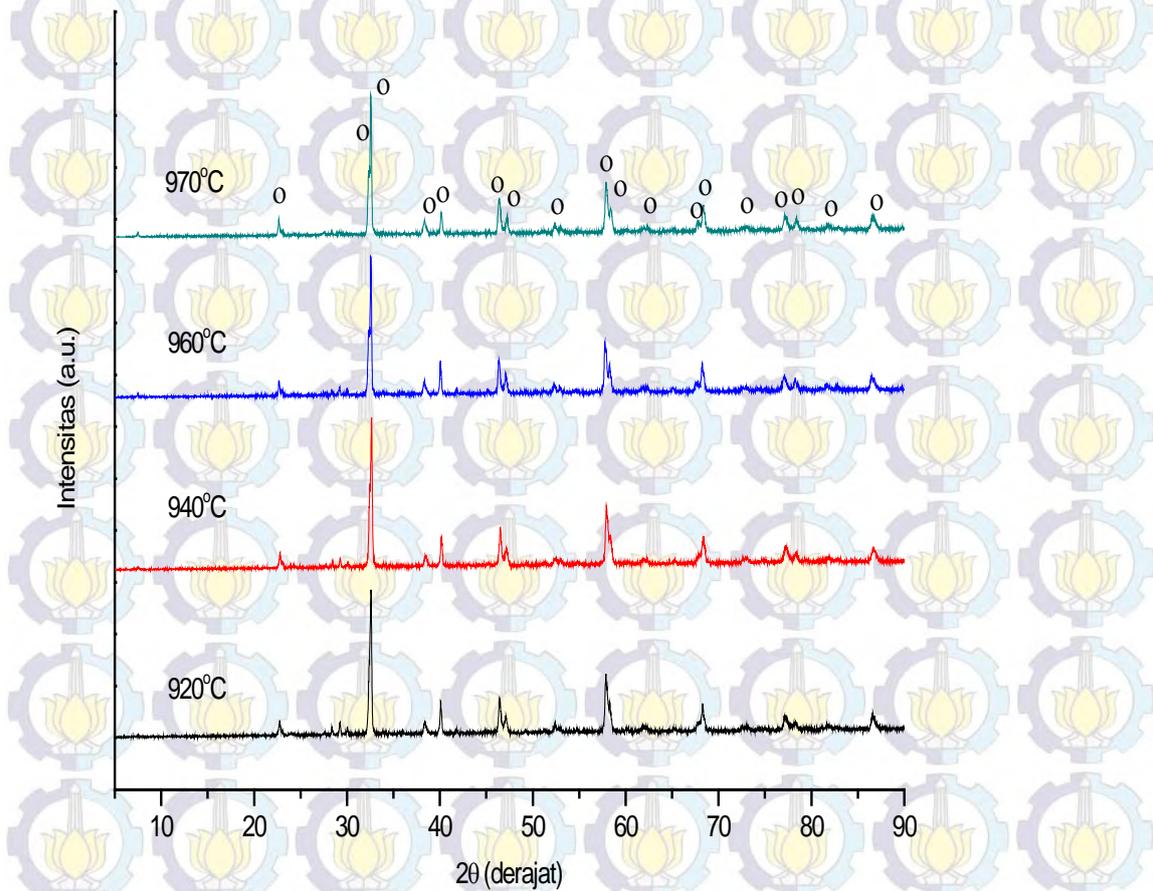
Berdasarkan hasil pencocokan puncak difraksi XRD pada sub bab sebelumnya (3.5.2), sampel dengan suhu re-kalsinasi ( $T_{rc}$ ) sampai  $900^{\circ}\text{C}$  masih menunjukkan adanya impuritas terutama di daerah sudut  $2\theta$  sekitar  $28-30^{\circ}$  berupa senyawa  $\text{BaCO}_3$ ,  $\text{BaCuO}_2$ ,  $\text{Nd}_2\text{BaCuO}_5$  dan  $\text{Nd}_2\text{BaO}_4$ . Oleh karena itu dilakukan penambahan suhu re-kalsinasi dari  $920$  sampai  $970^{\circ}\text{C}$  agar dapat menghilangkan fasa impuritas tersebut. Gambar 3.9 memperlihatkan pola difraksi sinar-X sampel  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan  $T_{rc}$  pada  $920$ ,  $940$ ,  $960$  dan  $970^{\circ}\text{C}$  selama 1 jam. Sedangkan Gambar 3.10 dan 3.11 memperlihatkan hasil pola difraksi sinar-X sampel dengan kombinasi unsur tanah jarang yaitu sampel  $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan  $T_{rc}$  pada  $920$ ,  $940$ ,  $960$  dan  $970^{\circ}\text{C}$  selama 1 jam. Dengan mengamati pola difraksi sinar-X khususnya pada sudut, intensitas, dan bentuk puncak, semua sampel sudah mengkristal dengan baik yang didominasi oleh kemunculan puncak yang berhubungan dengan fase RE-123 dengan struktur kristal ortorombik. Pola difraksi sinar-X yang dihasilkan hampir sama pada ketiga jenis sampel tersebut. Sampel  $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  merupakan kombinasi dua dan tiga RE dengan komposisi molar yang sama. Karena tidak tersedia referensi PDF yang sesuai dengan sampel yang dibuat pada penelitian ini, maka pencocokan puncak difraksi mengacu pada PDF

dengan unsur RE tunggal. Pencocokan puncak difraksi dilakukan dengan menggunakan PDF nomor 039-1419 (N. Wong 1987) dengan komposisi kimia  $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , grup ruang Pmmm (47), struktur kristal ortorombik dengan parameter kisi  $a = 3,844 \text{ \AA}$ ,  $b = 3,906 \text{ \AA}$  dan  $c = 11,722 \text{ \AA}$ . Fasa Gd-123 mengacu pada PDF nomor 039-1417 (N. Wong 1988) dengan komposisi kimia  $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , grup ruang Pmmm (47), struktur kristal ortorombik dengan parameter kisi  $a (3,844 \text{ \AA})$ ,  $b (3,906 \text{ \AA})$  dan  $c (11,722 \text{ \AA})$ . Sedangkan fasa Nd-123 mengacu pada PDF nomor 046-0229 (E. Antipov 1994) dengan komposisi kimia  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , grup ruang Pmmm (47), struktur kristal ortorombik dengan parameter kisi  $a (3,879 \text{ \AA})$   $b (3,916 \text{ \AA})$  dan  $c (11,765 \text{ \AA})$ .

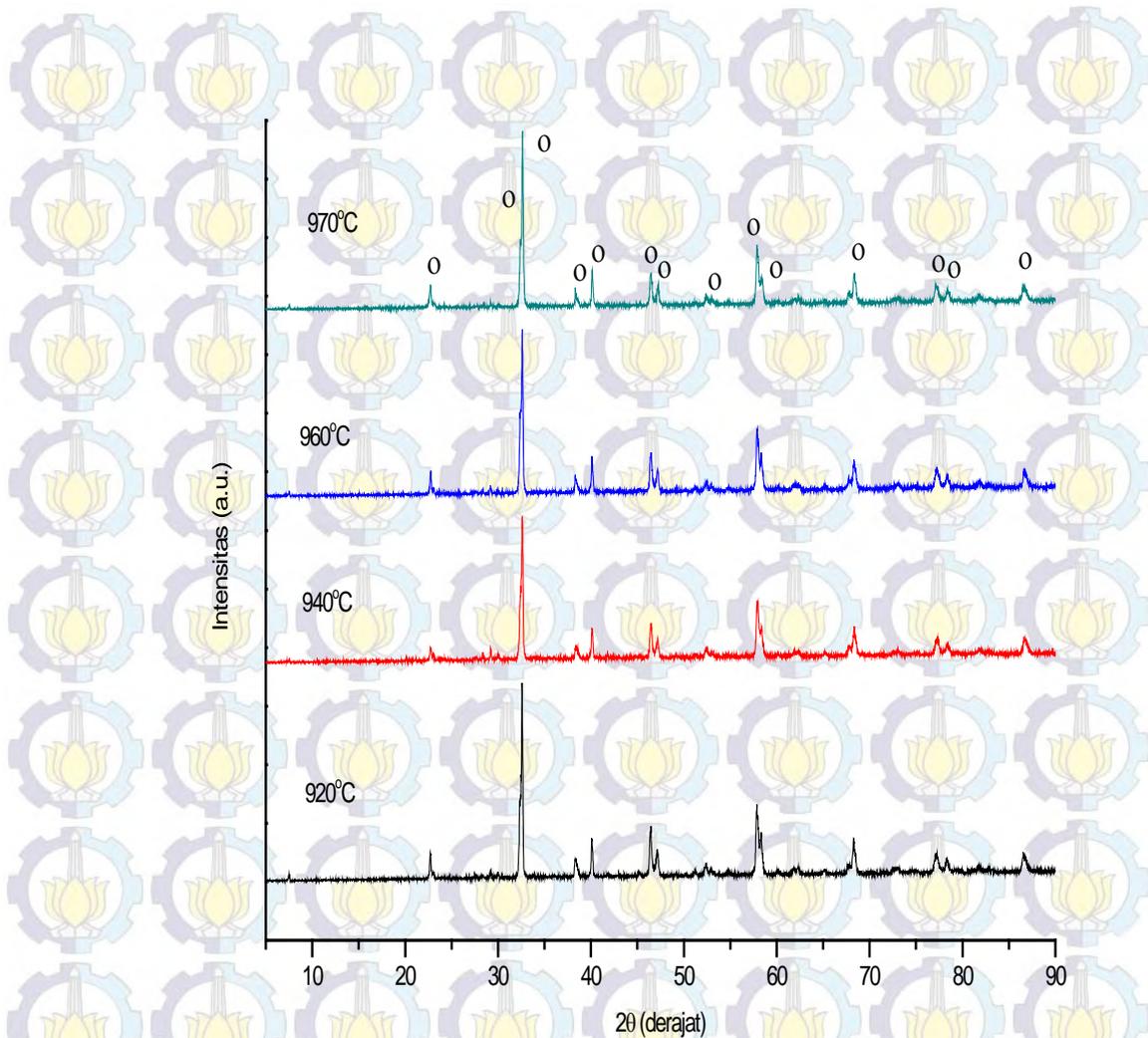


Gambar 3.9. Pola difraksi sinar-X ( $\text{CuK}\alpha$  radiation) sampel  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan variasi suhu re-kalsinasi. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : o ( $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ )

Hasil pencocokan menggunakan program *Match*, diperoleh bahwa kesesuaian sudut  $2\theta$  antara model dengan data hasil eksperimen sudah baik, akan tetapi terdapat perbedaan tinggi intensitas pada beberapa puncak. Secara umum intensitas puncak yang diperoleh dari hasil eksperimen lebih tinggi dibandingkan intensitas puncak model.



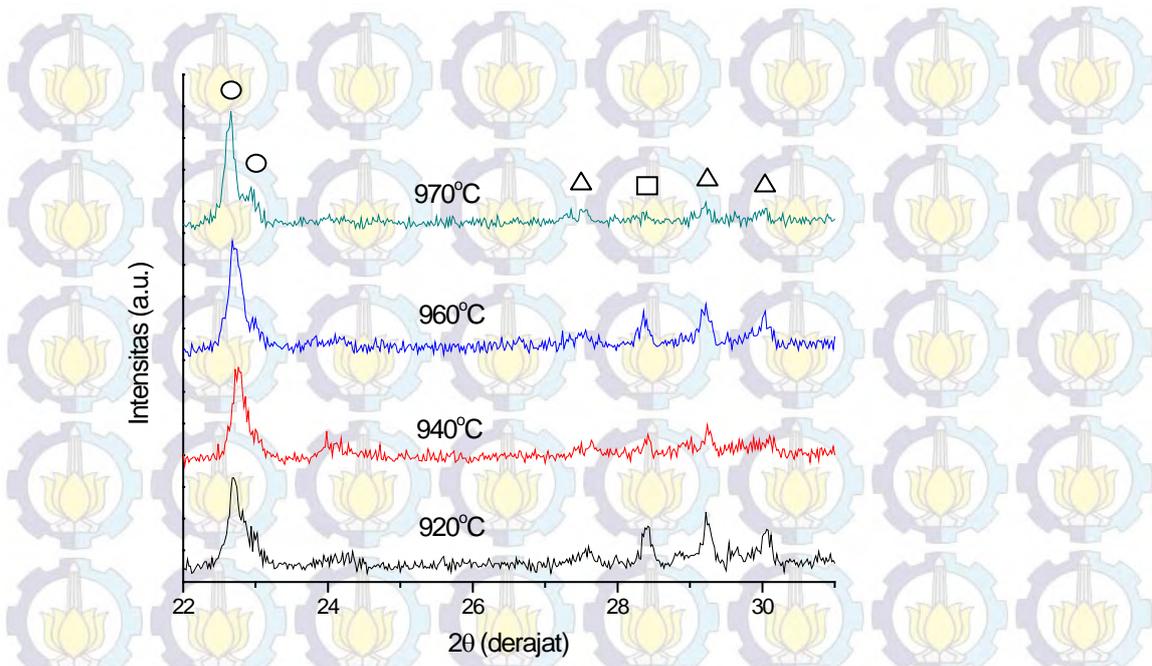
Gambar 3.10. Pola difraksi sinar-X ( $CuK\alpha$  radiation) sampel  $Nd_{0.5}Gd_{0.5}-123$  dengan variasi suhu re-kalsinasi. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : o ( $Nd_{0.5}Gd_{0.5}-123$ )



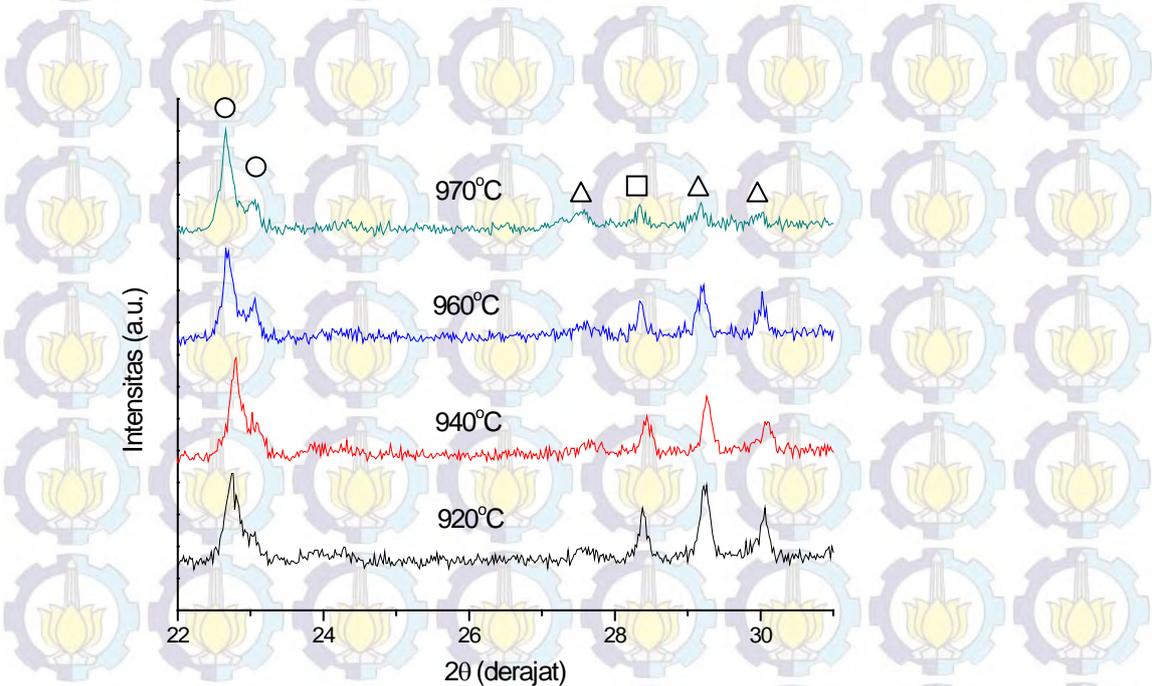
Gambar 3.11. Pola difraksi XRD ( $\text{CuK}\alpha$  radiation) sampel  $\text{Nd}_{0.33}\text{Eu}_{0.33}\text{Gd}_{0.33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan variasi suhu re-kalsinasi. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : o ( $\text{Nd}_{0.33}\text{Eu}_{0.33}\text{Gd}_{0.33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ )

Sama seperti hasil yang diperoleh pada sampel Nd-123 dengan  $T_{\text{rc}}$  pada 900°C, maka pada sampel  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (RE = Nd, Eu, Gd) dengan  $T_{\text{rc}}$  dari 920 sampai 970°C juga terdeteksi adanya fasa impuritas dengan intensitas yang kecil, terutama pada daerah sudut  $2\theta$  antara 22 dan 30°. Fasa impuritas yang terdeteksi adalah  $\text{BaCuO}_2$  (PDF nomor 038-1402) dan  $\text{BaNd}_2\text{O}_4$  (PDF nomor 042-1499).

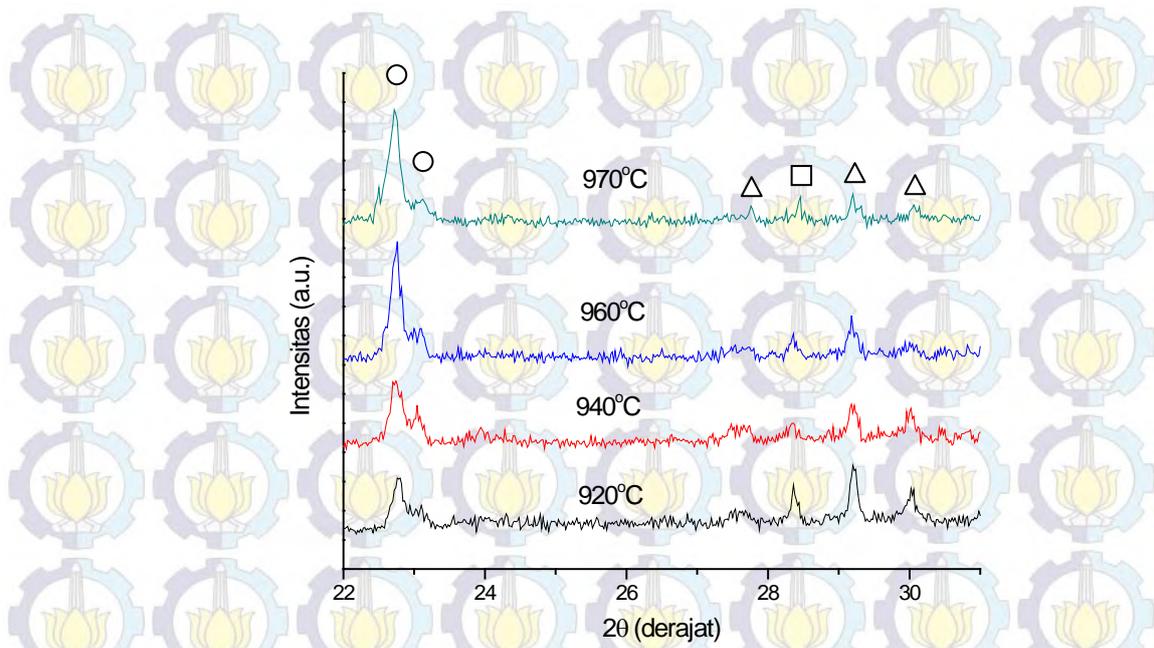
Pola penurunan fasa impuritas  $\text{BaCuO}_2$  dan  $\text{BaNd}_2\text{O}_4$  untuk sampel Nd-123,  $\text{Nd}_{0.5}\text{Gd}_{0.5-123}$  dan  $\text{Nd}_{0.33}\text{Eu}_{0.33}\text{Gd}_{0.33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  masing-masing diperlihatkan pada Gambar 3.12, 3.13 dan 3.14.



Gambar 3.12. Fasa impuritas pada sampel Nd-123 pada sudut  $2\theta$  dari 20 sampai 32°. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : o (Nd-123),  $\Delta$  (BaCuO<sub>2</sub>),  $\square$  (BaNd<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)



Gambar 3.13. Fasa impuritas pada sampel Nd<sub>0.5</sub>Gd<sub>0.5</sub>-123 pada sudut  $2\theta$  dari 20 sampai 32°. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : o (Nd<sub>0.5</sub>Gd<sub>0.5</sub>-123),  $\Delta$  (BaCuO<sub>2</sub>),  $\square$  (BaNd<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)



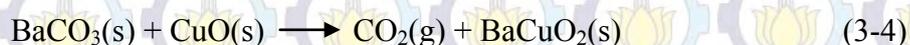
Gambar 3.14. Fasa impuritas pada sampel  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  pada sudut  $2\theta$  dari 20 sampai  $32^\circ$ . Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : o ( $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ),  $\Delta$  ( $\text{BaCuO}_2$ ),  $\square$  ( $\text{BaNd}_2\text{O}_4$ )

Hasil perhitungan fraksi berat untuk sampel  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan suhu re-kalsinasi dari 920 sampai  $970^\circ\text{C}$  diperlihatkan pada Tabel 3.3.

Tabel 3.3. Nilai prosentase fraksi berat fasa  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan fasa impuritas  $\text{BaCuO}_2$  pada suhu re-kalsinasi dari 920 sampai  $970^\circ\text{C}$

$T_{rc}$ ( $^\circ\text{C}$ )	Fraksi Berat (%)		
	Nd-123	$\text{BaCuO}_2$	$\text{BaNd}_2\text{O}_4$
920	94,2	4,1	1,7
940	94,7	3,8	1,5
960	95,2	3,1	1,7
970	95,9	2,5	1,6

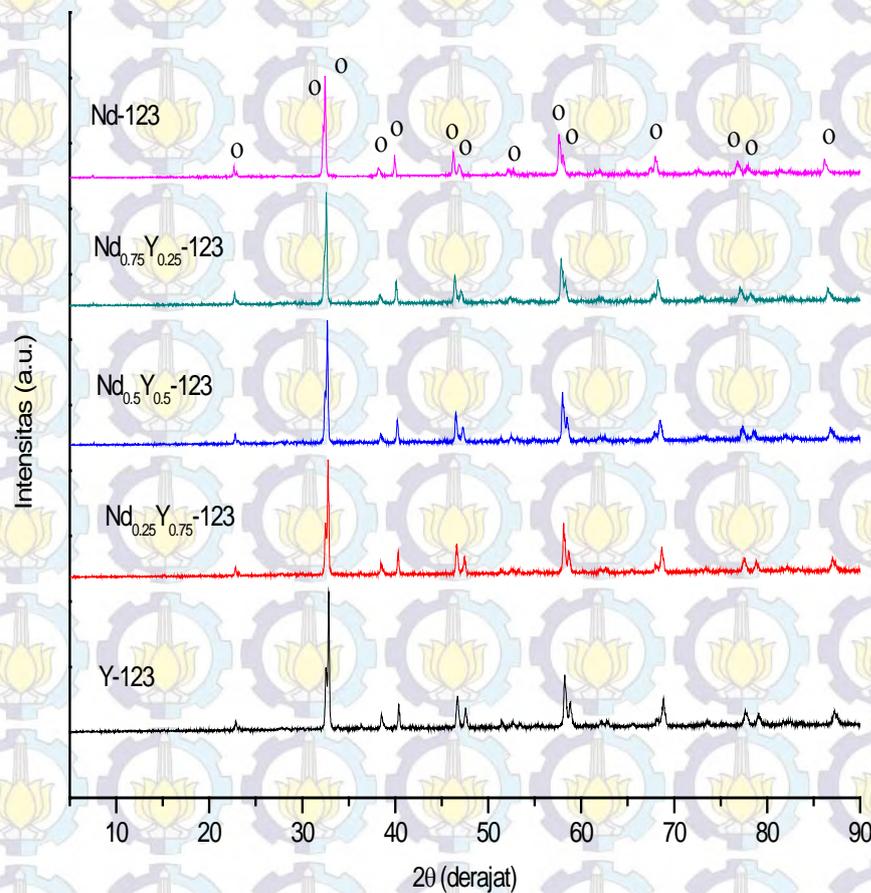
Dari pola difraksi sinar-X pada masing-masing gambar terlihat bahwa fasa impuritas dengan intensitas paling tinggi muncul pada semua sampel dengan suhu rekalsinasi 920°C. Semakin tinggi suhu re-kalsinasi, intensitas fasa impuritas semakin kecil, dan hampir tidak terlihat pada suhu 970°C. Penurunan intensitas fasa impuritas diikuti dengan pertumbuhan fasa (100) sekitar sudut 22,5°. Seperti yang telah dibahas pada sub bab sebelumnya, kemunculan fasa impuritas berupa senyawa BaCO<sub>3</sub> dan CuO masih cukup tinggi. Seperti diketahui bahwa senyawa BaCO<sub>3</sub> sangat sulit untuk terdekomposisi, dan pada suhu tinggi senyawa tersebut mudah untuk memadat sebelum terjadinya proses sinter (T. Nevriya 1989). Akan tetapi pada eksperimen ini BaCO<sub>3</sub> mampu terdekomposisi dengan cepat dengan penambahan suhu sinter dari 650 sampai 970°C. Hal tersebut dimungkinkan karena proses sintesis dengan *wet-mixing method* mampu membentuk senyawa BaCO<sub>3</sub> dalam ukuran kecil, sehingga apabila diberi perlakuan pemanasan dengan cepat mampu terdekomposisi. Hilangnya impuritas BaCO<sub>3</sub> dan CuO pada suhu antara 920 sampai 970°C dibarengi dengan pertumbuhan fasa BaCuO<sub>2</sub>. Reaksi kimia BaCO<sub>3</sub> menjadi BaCuO<sub>2</sub> diperlihatkan pada persamaan reaksi (A. Bourdillon 1994)



Tabel 3.3 masih memperlihatkan fasa impuritas berupa BaCuO<sub>2</sub> dan BaNd<sub>2</sub>O<sub>4</sub> dengan prosentase fraksi berat semakin menurun dengan meningkatnya suhu rekalsinasi dari 920 s ampai 970°C. Sampel Nd-123 pada suhu 900°C (sub bab 3.5.2) mempunyai fraksi berat sebesar 92,4 % (Tabel 3.2), bertambah menjadi 94,2 % pada suhu 920°C. Harga fraksi berat tersebut semakin bertambah dengan penambahan rekalsinasi sampai suhu 970°C seperti terlihat pada Tabel 3.3. Sisa impuritas yang terdeteksi mempunyai fraksi berat yang sangat kecil yaitu 2,5 % untuk senyawa BaCuO<sub>2</sub> dan 1,6 % untuk senyawa BaNdO<sub>4</sub>. Senyawa-senyawa tersebut akan membentuk NdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-8</sub> pada suhu yang lebih tinggi melalui proses pelelehan sebagian (*partial melting*) atau pelelehan (*melting*) sehingga diperoleh sampel dengan fasa tunggal. Akan tetapi pada penelitian ini tidak dilakukan proses sintesis menggunakan metode pelelehan, karena sampel dengan fraksi berat di atas 95 % sudah cukup untuk dilakukan analisis struktur.

### 3.5.3. Pola difraksi sinar-X superkonduktor $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

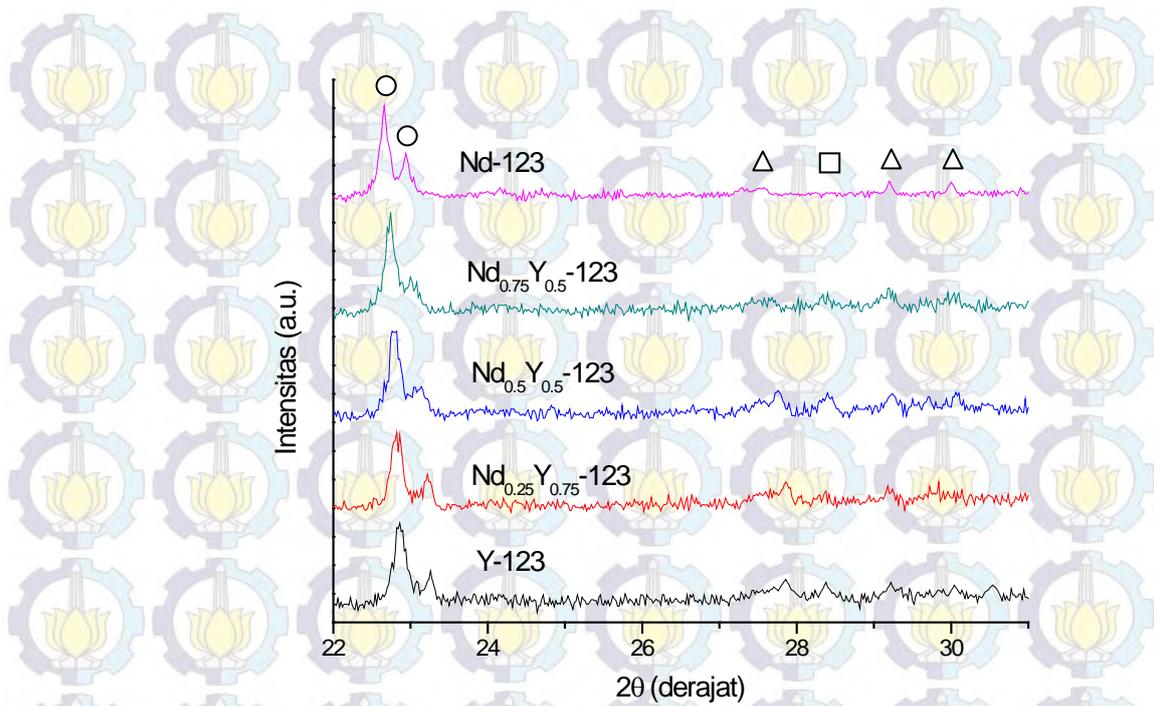
Mengacu dari hasil yang diperoleh pada sintesis Nd-123 (sub bab 3.5.2), dimana fraksi berat terbesar diperoleh pada suhu re-kalsinasi  $970^\circ\text{C}$ , maka proses sintesis untuk sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dilakukan pada suhu tersebut selama sepuluh jam. Gambar 3.15 memperlihatkan hasil karakterisasi XRD semua sampel YBCO yang disubstitusi dengan unsur Nd pada komposisi kimia  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan variasi  $x$  dari 0 sampai 1 ( $x = 0, 0,25, 0,5, 0,75, 1$ ).



Gambar 3.15. Pola difraksi sinar-X ( $\text{CuK}\alpha$  radiation) sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$  ( $x=0, 0,25, 0,5, 0,75, 1$ ). Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : o ( $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$ )

Secara umum setiap sampel memperlihatkan puncak tajam yang mengindikasikan bahwa sampel sudah mengkristal dengan baik, walaupun di beberapa sudut masih memperlihatkan adanya penumpukan (*overlapping*) maupun puncak yang belum terpisah secara sempurna. Pola difraksi sinar-X hampir sama untuk semua sampel, baik posisi sudut  $2\theta$ , maupun intensitasnya. Hal tersebut mengindikasikan bahwa komposisi kimia dari campuran senyawa awal sudah sesuai dengan komposisi kimia yang diharapkan.

Untuk mengamati fasa-fasa yang terkandung dalam sampel superkonduktor dilakukan proses pencocokan puncak difraksi dengan mengacu pada referensi *database* puncak menggunakan program *Match* dan perhitungan fraksi berat menggunakan program *Rietica*. Kasus yang sama pada sub bab 3.5.2, bahwa pencocokan agak sulit dilakukan karena belum tersedianya referensi PDF untuk sampel yang sesuai dengan komposisi awal bahan yang disintesis pada penelitian ini. Oleh karena itu proses pencocokan dilakukan dengan mengacu pada dua PDF, yaitu untuk sistem Nd-123 dan Y-123. Untuk sistem Y-123 pencocokan mengacu pada PDF dengan nomor 039-0486 (N. Wong 1987) yang mempunyai struktur kristal ortorombik, grup ruang Pmmm (47), dengan parameter kisi  $a$  (3,8214 Å),  $b$  (3,8877 Å) dan  $c$  (11,693 Å), sedangkan PDF nomor 046-0229 (E. Antipov 1994) diacu untuk sistem Nd-123. Difraktogram yang diperoleh memperlihatkan puncak-puncak yang sesuai dengan karakteristik superkonduktor  $Nd_xY_{1-x}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ , yang ditandai dengan munculnya puncak dengan indeks Miller (003), (013), (110), (103), (005), (113), (006), (201), (116), (213), (018), (224), (131) dan (305). Intensitas tertinggi muncul pada puncak dengan indeks Miller (110) dan (103), dengan intensitas 2115 cps pada sampel  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . Secara keseluruhan fasa NdY-123 dengan struktur ortorombik dan grup ruang Pmmm telah mendominasi puncak-puncak difraktogram. Pada daerah  $2\theta$  antara  $21 - 31^\circ$  masih terdeteksi kemunculan fasa impuritas berupa fasa  $BaCuO_2$  dan fasa  $BaNd_2O_4$  dengan intensitas kecil.



Gambar 3.16. Fasa impuritas pada sampel  $Nd_xY_{1-x}-123$  pada sudut  $2\theta$  dari 22 sampai  $31^\circ$ . Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : o ( $Nd_xY_{1-x}-123$ ),  $\Delta$  ( $BaCuO_2$ ),  $\square$  ( $BaNd_2O_4$ )

Tabel 3.4. Nilai prosentase fraksi berat fasa  $Nd_xY_{1-x}-123$  dan fasa impuritas pada suhu re-kalsinasi  $970^\circ C$

Sampel	Fraksi Berat (%)		
	$Nd_xY_{1-x}-123$	$BaCuO_2$	$BaNd_2O_4$ atau $BaY_2O_4$
Nd-123	97,8	1,7	0,5
$Nd_{0,75}Y_{0,25}-123$	96,7	2,1	1,2
$Nd_{0,5}Y_{0,5}-123$	96,8	1,9	1,3
$Nd_{0,25}Y_{0,75}-123$	97,0	2,2	0,8
Y-123	96,6	2,1	1,3

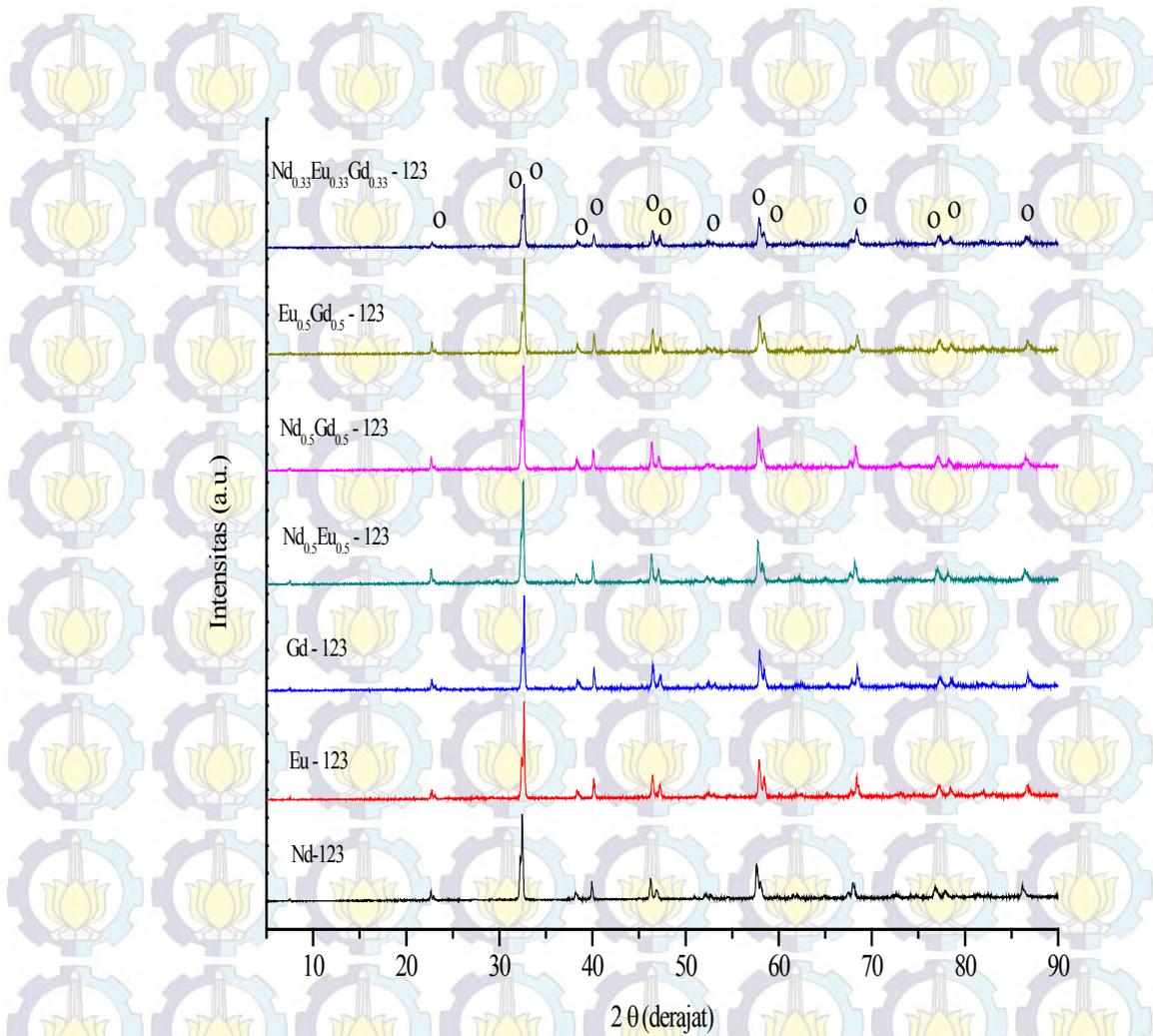
Pola difraksi sinar-X untuk sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$  pada sudut  $2\theta$  dari 21 sampai  $31^\circ$  diperlihatkan pada Gambar 3.16 sedangkan harga fraksi berat fasa  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$  serta fasa impuritas diperlihatkan pada Tabel 3.4.

Tabel 3.4 memperlihatkan hasil yang hampir sama dengan penelitian pada sub bab 3.5, di mana sintesis sampel dengan suhu re-kalsinasi  $970^\circ\text{C}$  ternyata masih menyisakan fasa impuritas berupa  $\text{BaCuO}_2$  dengan fraksi berat dari 1,9 sampai 2,2 % dan  $\text{BaNd}_2\text{O}_4$  atau  $\text{BaY}_2\text{O}_4$  dengan fraksi berat dari 0,8 sampai 1,3 %.

### 3.5.4. Pola difraksi sinar-X superkonduktor RE-123 (Nd, Eu, Gd)

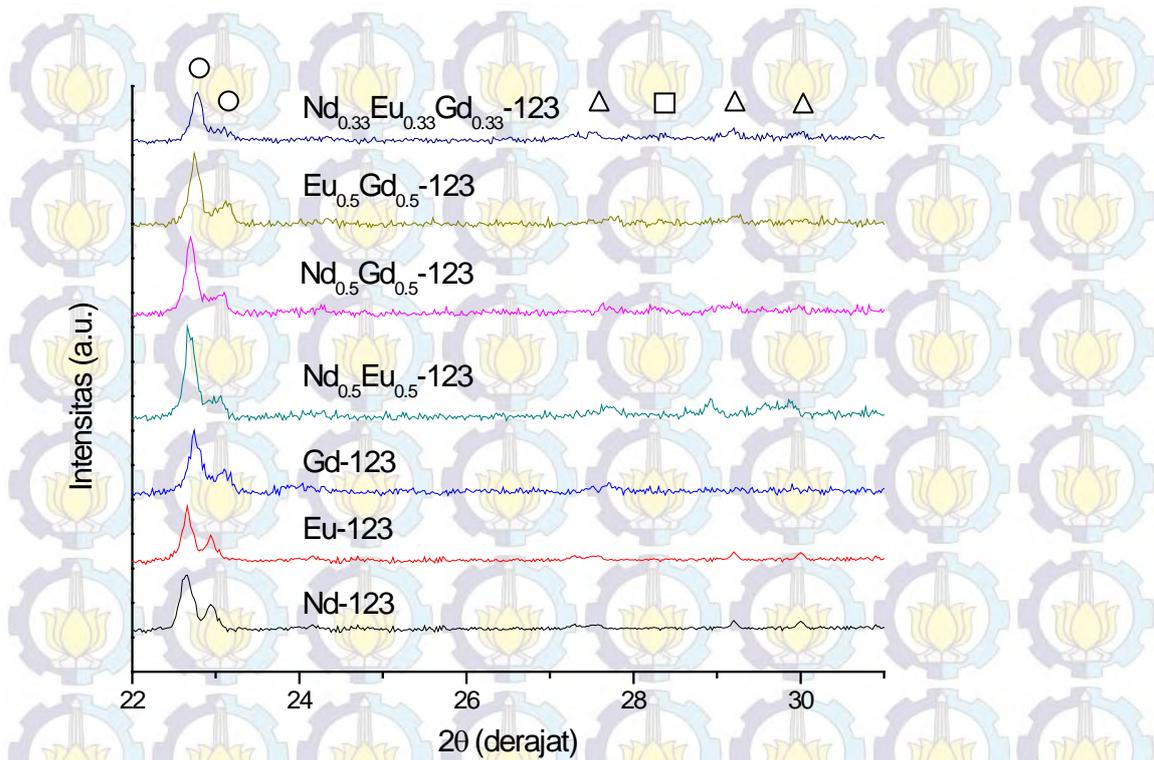
Pola difraksi sinar-X semua sampel RE-123 dengan satu, dua, tiga kombinasi RE (Nd, Eu, Gd) diperlihatkan pada Gambar 3.17. Secara umum diperoleh pola puncak-puncak yang hampir sama pada setiap sampel, baik dari sudut  $2\theta$ , maupun intensitasnya. Puncak-puncak yang ditampilkan terdiri dari puncak-puncak yang tajam, hal ini menunjukkan sampel RE-123 sudah mengkristal dengan baik. Pada sampel  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  yang disintesis pada suhu re-kalsinasi  $970^\circ\text{C}$ , hampir tidak terdeteksi fasa impuritas, kecuali pada sampel  $\text{Nd}_{0,5}\text{Eu}_{0,5}\text{-123}$  terdeteksi impuritas  $\text{BaCuO}_2$  dan  $\text{BaNd}_2\text{O}_4$  dengan intensitas sangat kecil.

Pada tahap pencocokan puncak difraksi sampel RE-123 dengan variasi unsur tanah jarang, permasalahan yang sama dengan sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  juga terjadi, dimana tidak tersedianya PDF RE-123 untuk kombinasi dua dan tiga RE dengan komposisi kimia yang sama. Oleh karena itu pencocokan puncak difraksi dilakukan dengan mengacu pada semua PDF penyusun senyawa. PDF nomor 039-1419 (N. Wong 1987) dengan komposisi kimia  $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , grup ruang Pmmm (47), struktur kristal ortorombik dengan parameter kisi  $a = 3,844 \text{ \AA}$ ,  $b = 3,906 \text{ \AA}$  dan  $c = 11,722 \text{ \AA}$  diacu untuk fasa Eu-123. PDF nomor 039-1417 (N. Wong 1988) dengan komposisi kimia  $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  grup ruang Pmmm (47), struktur kristal ortorombik dengan parameter kisi  $a (3,844 \text{ \AA})$ ,  $b (3,906 \text{ \AA})$  dan  $c (11,722 \text{ \AA})$  diacu untuk fasa Gd-123. Sedangkan untuk PDF nomor 046-0229 (E. Antipov 1994) dengan komposisi kimia  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , grup ruang Pmmm (47), struktur kristal ortorombik dengan parameter kisi  $a (3,879 \text{ \AA})$   $b (3,916 \text{ \AA})$  dan  $c (11,765 \text{ \AA})$  diacu untuk fasa Nd-123.



Gambar 3.17. Pola difraksi sinar-X ( $CuK\alpha$  radiation) sampel RE-123 dengan satu, dua dan tiga kombinasi RE. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : o (RE-123)

Pola difraksi sinar-X untuk sampel RE-123 dengan variasi unsur tanah jarang pada sudut  $2\theta$  dari 21 sampai  $31^\circ$  diperlihatkan pada Gambar 3.18 dan harga fraksi berat fasa RE-123 serta fasa impuritas diperlihatkan pada Tabel 3.5.



Gambar 3.18. Fasa impuritas pada sampel RE-123 di daerah sudut antara 22 dan 31°.

Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol :  $\circ$  (RE-123),  $\Delta$  ( $\text{BaCuO}_2$ ),  $\square$  ( $\text{BaNd}_2\text{O}_4$ )

Tabel 3.5. Nilai prosentase fraksi berat fasa RE-123 dengan variasi unsur tanah jarang dan fasa impuritas pada suhu re-kalsinasi 970°C

Sampel	Fraksi Berat (%)		
	RE-123 (RE=Nd,Eu,Gd)	$\text{BaCuO}_2$	$\text{BaRE}_2\text{O}_4$
Nd-123	97,8	1,7	0,5
Eu-123	98,4	0,9	0,7
Gd-123	99,1	0,7	0,2
$\text{Nd}_{0.5}\text{Eu}_{0.5}\text{-123}$	97,5	1,8	0,7
$\text{Nd}_{0.5}\text{Gd}_{0.5}\text{-123}$	98,0	1,2	0,8
$\text{Eu}_{0.5}\text{Gd}_{0.5}\text{-123}$	98,8	0,9	0,3
$\text{Nd}_{0.33}\text{Eu}_{0.33}\text{Gd}_{0.33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-6}$	98,1	1,4	0,5

Secara umum, perhitungan hasil fraksi berat untuk sampel RE-123 (RE=Nd, Eu, Gd) dengan suhu re-kalsinasi 970°C adalah sangat tinggi, yaitu antara 97,5 dan 99,1 %. Hal tersebut mengindikasikan bahwa suhu 970°C merupakan suhu optimal pembentukan kristal RE-123 dengan *wet-mixing method* dan asam nitrat (HNO<sub>3</sub>) sebagai *digest agent*. Kalau dibandingkan dengan proses sintesis menggunakan metode *solid state reaction* untuk bahan yang sama dan dengan suhu pemanasan pada 1050°C selama 20 jam yang dianil dengan aliran O<sub>2</sub> (W.G. Suharta 2007), maka proses sintesis dengan *wet-mixing method* menghasilkan sampel RE-123 yang lebih baik. Hal tersebut dapat dilihat dari fraksi berat yang dihasilkan dengan metode *solid state reaction* sebesar 88 %, sedangkan dengan *wet-mixing method* mempunyai harga fraksi berat di atas 97 %.

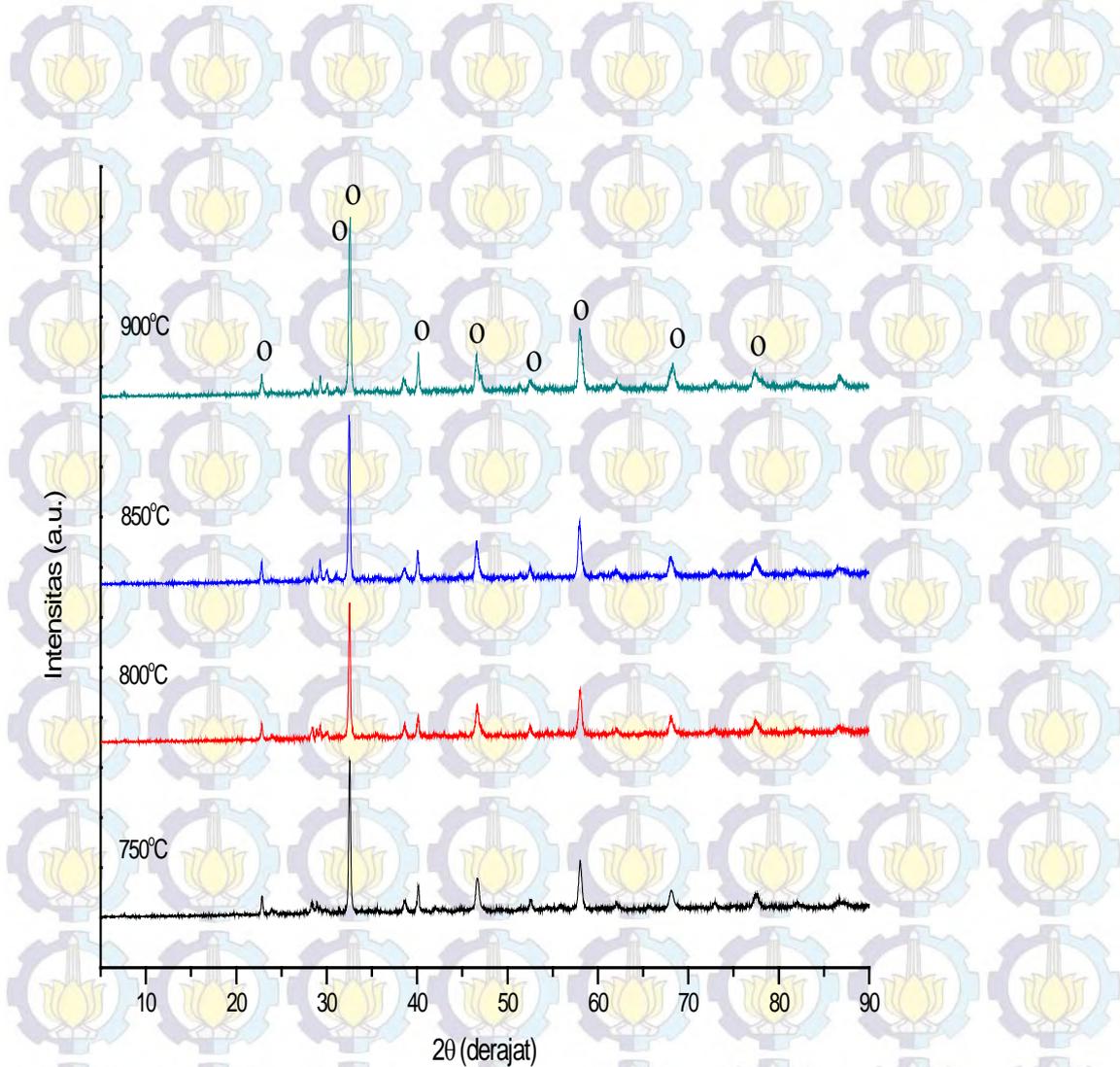
### 3.5.5. Pola difraksi sinar-X sampel Nd<sub>0,33</sub>Eu<sub>0,33</sub>Gd<sub>0,33</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>

Pada penelitian ini dilakukan sintesis sampel Nd<sub>0,33</sub>Eu<sub>0,33</sub>Gd<sub>0,33</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> dengan proses sintesis yang berbeda dengan sampel Nd-123. Dengan mengkaji hasil dan pembahasan pada sub-bab sebelumnya, dimana fasa impuritas masih terdeteksi pada sampel Nd-123 yang disebabkan oleh pencampuran (*mixing*) awal yang kurang sempurna, maka disintesis sampel Nd<sub>0,33</sub>Eu<sub>0,33</sub>Gd<sub>0,33</sub>-123 dengan memperpanjang waktu pencampuran. Pada sub-bab ini dilaporkan hasil sintesis sampel Nd<sub>0,33</sub>Eu<sub>0,33</sub>Gd<sub>0,33</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> dengan *mixing* selama 24 jam dan suhu re-kalsinasi pada 750, 800, 850 dan 900°C selama 30 (tiga puluh) menit.

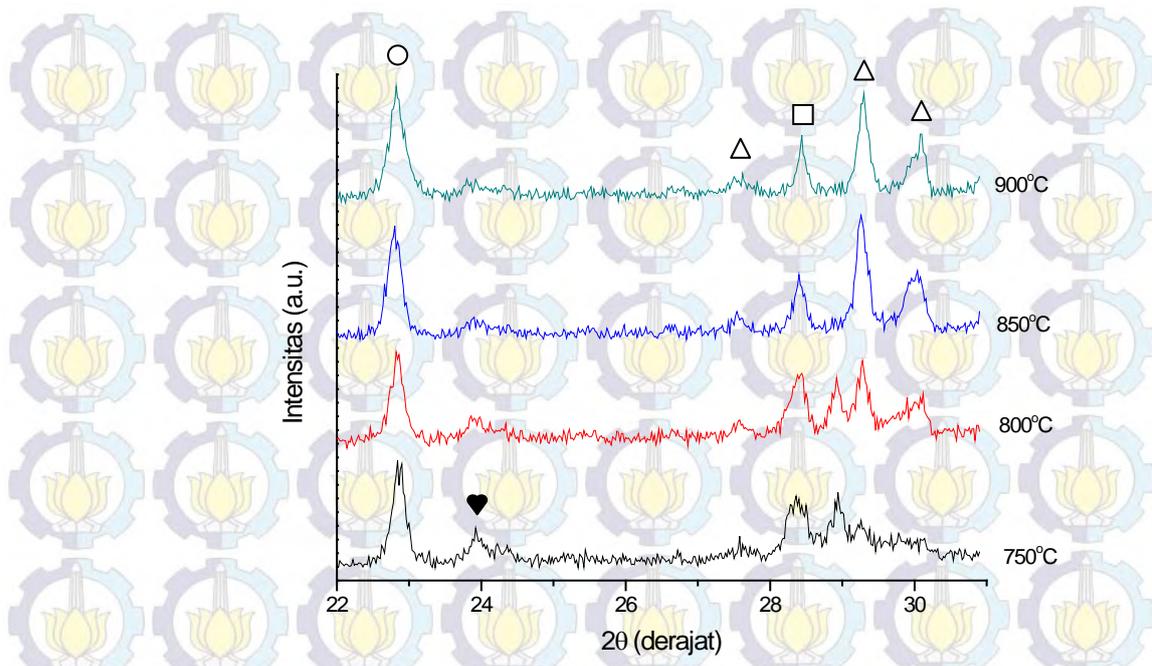
Gambar 3.19 memperlihatkan hasil karakterisasi XRD untuk sampel Nd<sub>0,33</sub>Eu<sub>0,33</sub>Gd<sub>0,33</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> dengan perlakuan *mixing* selama 24 jam dan suhu re-kalsinasi pada interval suhu dari 750 sampai 900°C selama 30 (tiga puluh) menit. Pengamatan fasa impuritas pada sudut 2θ dari 22 sampai 31° diperlihatkan pada Gambar 20.

Secara umum, difraktogram memperlihatkan puncak tajam yang mengindikasikan terjadinya kristalisasi Nd<sub>0,33</sub>Eu<sub>0,33</sub>Gd<sub>0,33</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> dengan sempurna yang didominasi oleh keberadaan struktur ortorombik. Dari pola puncak difraksi yang dihasilkan terlihat bahwa intensitas puncak sampel Nd<sub>0,33</sub>Eu<sub>0,33</sub>Gd<sub>0,33</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> bertambah dengan penambahan suhu re-kalsinasi dari 750 sampai 900°C. Dua intensitas tertinggi sampel Nd<sub>0,33</sub>Eu<sub>0,33</sub>Gd<sub>0,33</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> terdeteksi pada puncak dengan

indeks Miller (110) dengan posisi  $2\theta$  sekitar  $32.6^\circ$  dan puncak (116) dengan posisi  $2\theta$  sekitar  $57,8^\circ$ . Intensitas yang terdeteksi pada puncak (110) adalah 1399, 1568, 1650 dan 1820 cps, masing-masing pada suhu 750, 800, 850, dan  $900^\circ\text{C}$ . Sedangkan intensitas yang terdeteksi pada puncak (116) adalah 529, 571, 640 dan 690 cps, masing-masing pada suhu 750, 800, 850 dan  $900^\circ\text{C}$ .



Gambar 3.19. Pola difraksi sinar-X ( $\text{CuK}\alpha$  radiation) sampel  $\text{Nd}_{0.33}\text{Eu}_{0.33}\text{Gd}_{0.33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  yang disintesis dengan proses *mixing* selama 24 jam dan variasi suhu re-kalsinasi ( $750\text{-}900^\circ\text{C}$ ) selama 30 menit. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : o ( $\text{Nd}_{0.33}\text{Eu}_{0.33}\text{Gd}_{0.33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ )



Gambar 3.20. Fasa impuritas pada sampel  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  yang disintesis dengan proses *mixing* selama 24 jam dan variasi suhu re-kalsinasi ( $750\text{--}900^\circ\text{C}$ ) selama 30 menit pada sudut  $22\text{--}31^\circ$ . Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*. Simbol : o ( $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ), ♥ ( $\text{BaCO}_3$ ), Δ ( $\text{BaCuO}_2$ ), □ ( $\text{BaNd}_2\text{O}_4$ )

Peningkatan intensitas puncak, baik pada puncak dengan indeks Miller (110), (103), (123), (116) dan (213) dipengaruhi oleh tingkat kristalisasi bahan. Dalam kristalografi, peningkatan intensitas puncak berhubungan dengan peningkatan kristalisasi atau jumlah kristalit yang terbentuk. Semakin banyak kristalit yang terbentuk, maka intensitas puncak semakin tinggi.

Hasil pencocokan puncak difraksi untuk sampel  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan perlakuan *mixing* selama 24 jam dan suhu re-kalsinasi  $750, 800, 850$  dan  $900^\circ\text{C}$  selama 30 menit memperlihatkan struktur ortorombik. Perbandingan dengan sampel sebelumnya, memperlihatkan perbedaan dimana pembentukan struktur ortorombik pada sampel  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan perlakuan *mixing* selama 24 jam sudah memperlihatkan intensitas cukup tinggi pada suhu  $750^\circ\text{C}$ , sedangkan pada sampel Nd-123 dengan perlakuan *mixing* selama 30 menit, struktur ortorombik mulai terbentuk pada suhu di atas  $750^\circ\text{C}$ . Hal tersebut mengindikasikan bahwa perlakuan *mixing* akan menentukan ukuran butiran awal, dimana semakin kecil ukuran butiran awal maka akan mempermudah terjadinya ikatan antar ion dalam membentuk senyawa yang diinginkan.

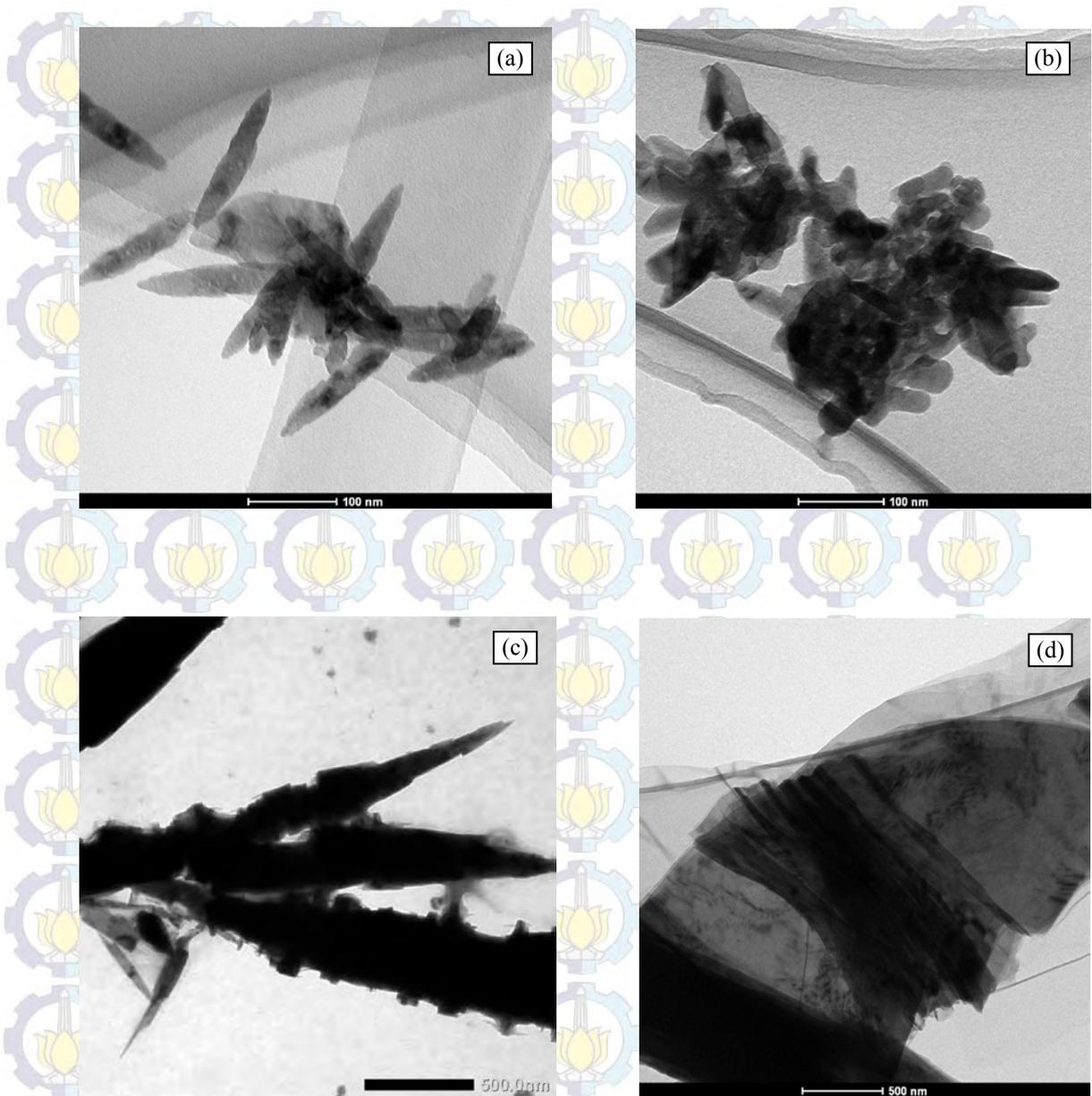
Sama seperti hasil yang diperoleh pada sampel Nd-123, sampel  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}$ -123 juga memperlihatkan adanya fasa impuritas, terutama pada daerah sudut  $2\theta$  antara  $22$  dan  $31^\circ$ . Fasa-fasa impuritas yang terdeteksi adalah  $\text{BaCO}_3$ ,  $\text{BaNd}_2\text{O}_4$  dan  $\text{BaCuO}_2$ .

Peningkatan suhu re-kalsinasi mengakibatkan intensitas fasa impuritas  $\text{BaCO}_3$  menurun, sejalan dengan peningkatan intensitas fasa  $\text{BaCuO}_2$ . Hal tersebut dimungkinkan karena perlakuan *mixing* selama 24 jam mampu membentuk senyawa  $\text{BaCO}_3$  dalam ukuran kecil, sehingga apabila diberi perlakuan pemanasan dengan cepat mampu terdekomposisi.

### 3.6. Morfologi

#### 3.6.1. Morfologi sampel $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-8}$

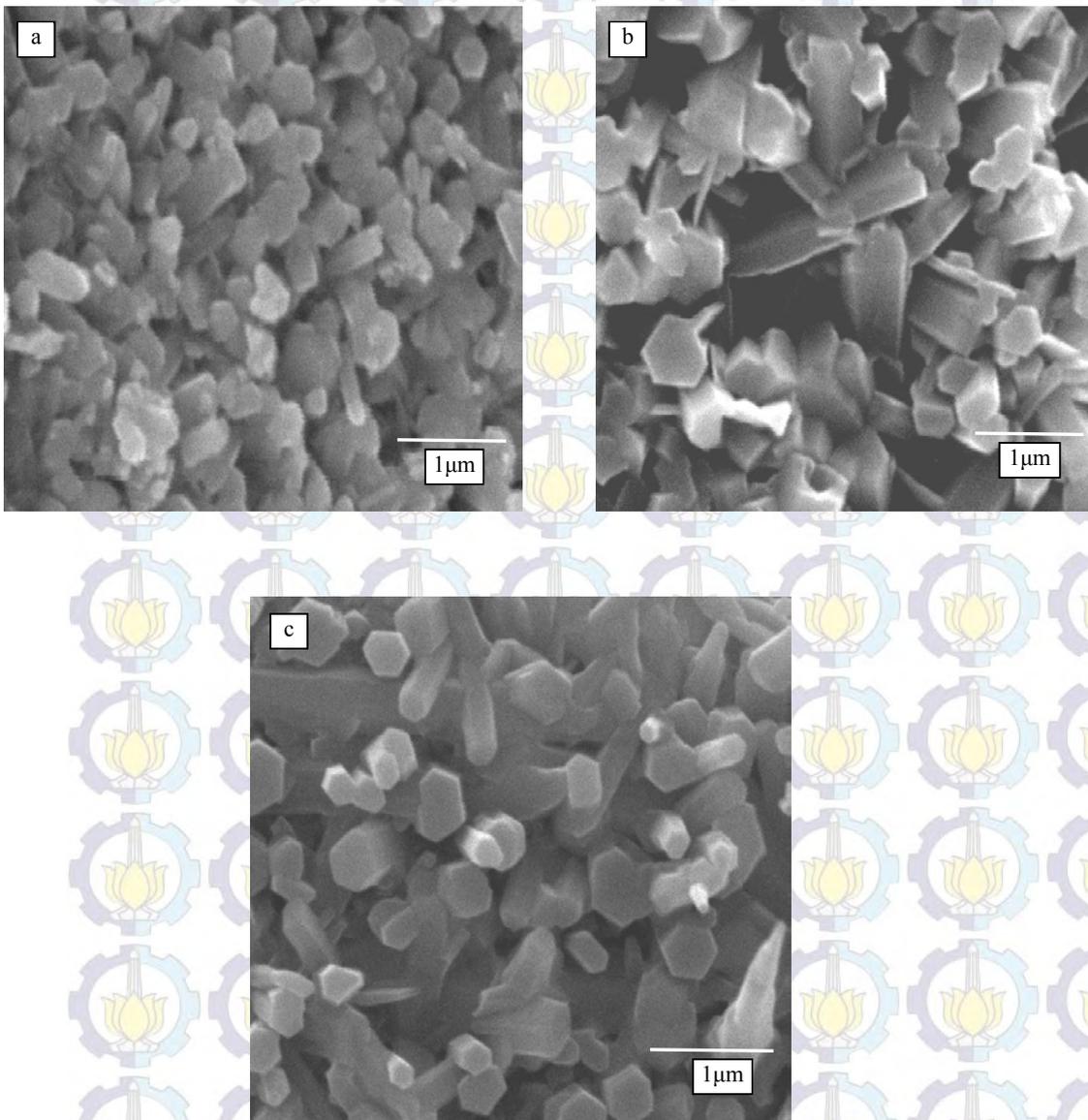
Pengamatan morfologi dengan *transmission electron microscopy* (TEM) dari sampel Nd-123 dengan perlakuan *mixing* selama 30 menit dan  $T_{\text{rc}}$  pada  $700$ ,  $750$ ,  $800$  dan  $900^\circ\text{C}$  selama satu jam diperlihatkan pada Gambar 3.21. Dari Gambar terlihat bahwa ukuran partikel pada sampel dengan suhu re-kalsinasi  $700$  dan  $750^\circ\text{C}$  berada dalam skala  $100$  nm, sedangkan ukuran partikel pada sampel dengan suhu re-kalsinasi  $800$  dan  $900^\circ\text{C}$  berada dalam skala  $500$  nm. Dari hasil perhitungan diperoleh ukuran partikel untuk sampel dengan suhu re-kalsinasi  $700$  dan  $750^\circ\text{C}$  berkisar antara  $100$ - $160$  nm. Secara umum bentuk partikel Nd-123 pada suhu sinter  $700$ - $900^\circ\text{C}$  berbentuk batangan (*rod shape*). Hasil perhitungan ukuran partikel menggunakan persamaan *Scherrer* umumnya lebih kecil dibandingkan perhitungan ukuran partikel hasil karakterisasi TEM. Hal tersebut dapat dipahami, karena perhitungan *Scherrer* mengambil rata-rata ukuran partikel dari semua partikel dalam sampel, sedangkan hasil TEM hanya mengambil bagian kecil dari keseluruhan sampel. Ukuran partikel menjadi semakin besar dengan peningkatan suhu re-kalsinasi. Membesarnya ukuran partikel terjadi akibat energi panas yang diterima atom digunakan untuk melakukan gerak vibrasi, rotasi dan dilatasi. Gerakan atom tersebut memungkinkan untuk terjadinya regangan (*strain*), yang menyebabkan parameter kisi bertambah panjang dengan volume sel semakin meningkat dan ukuran partikel juga bertambah besar, yang mengindikasikan bahwa sudah mulai terjadi aglomerasi partikel.



Gambar 3.21. Morfologi TEM sampel Nd-123 dengan suhu re-kalsinasi : (a) 700°C, (b) 750°C, (c) 800°C dan (d) 900°C

### 3.6.2. Morfologi sampel RE-123 pada $T_{rc} = 920-970^{\circ}\text{C}$

Morfologi hasil karakterisasi SEM untuk sampel  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan suhu re-kalsinasi 920, 940 dan  $970^{\circ}\text{C}$  selama satu jam diperlihatkan pada Gambar 3.22 dalam skala  $1\ \mu\text{m}$ . Gambar SEM memperlihatkan ukuran partikel yang homogen dan terdistribusi dalam sampel dengan bentuk yang menggambarkan karakteristik fasa Nd-123 yaitu berbentuk batangan.

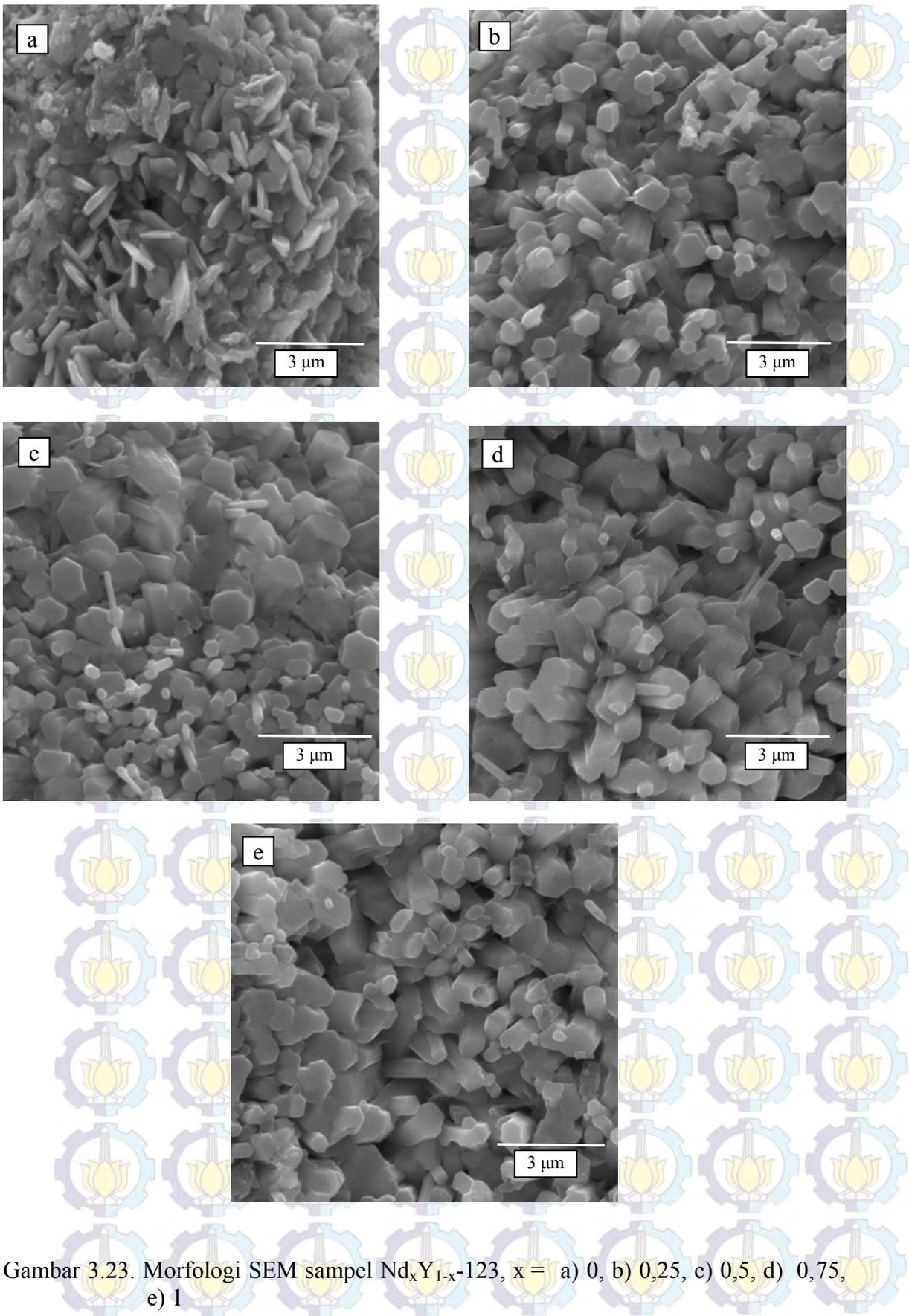


Gambar 3.22. Morfologi SEM sampel  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan suhu re-kalsinasi : (a)  $920^{\circ}\text{C}$ , (b)  $940^{\circ}\text{C}$ , (c)  $970^{\circ}\text{C}$

Kalau dibandingkan dengan hasil penelitian Caixuan Xu (C. Xu 2005) yang menggunakan *ball-milling* dalam proses pencampurannya, homogenitas ukuran partikel sampel  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan suhu re-kalsinasi pada 920, 940 dan 970°C pada penelitian ini lebih baik. Sehingga dapat dikatakan bahwa proses sintesis dengan menggunakan *wet-mixing method* sangat efektif untuk menghasilkan ukuran partikel yang homogen.

### 3.6.3. Morfologi superkonduktor $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

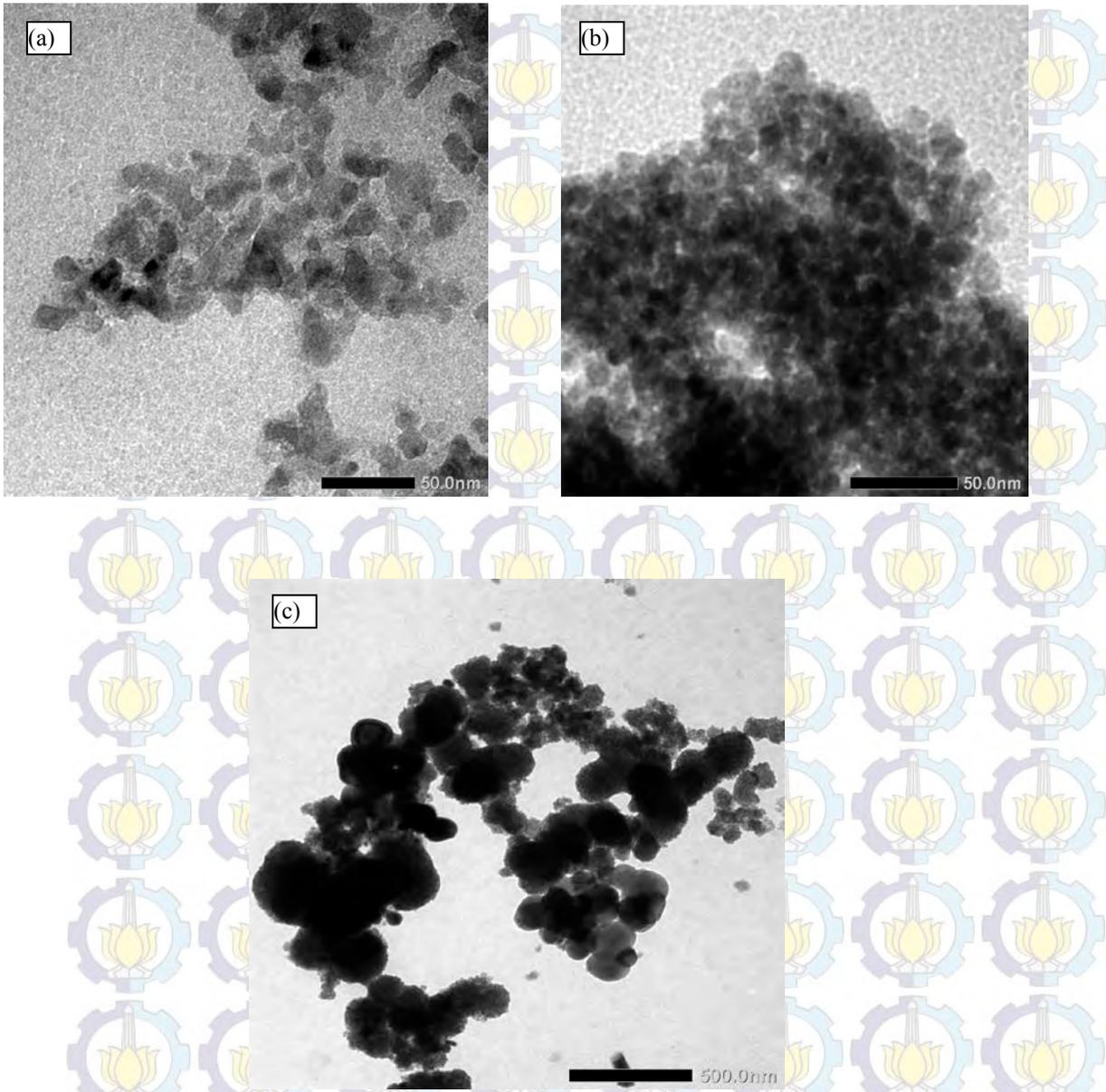
Gambar 3.23 memperlihatkan tipe mikrostruktur SEM dalam skala 3  $\mu\text{m}$  dari sampel superkonduktor  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x=0, 0,25, 0,5, 0,75, 1$ ) dengan pembesaran 30.000x. Secara umum, bentuk dan ukuran partikel sampel secara relatif terlihat homogen, walaupun beberapa partikel terlihat agak lebih kecil. Khususnya untuk sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x = 0$ ), ukuran partikel terlihat lebih kecil dibandingkan dengan sampel dengan substitusi unsur Nd.



Gambar 3.23. Morfologi SEM sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}-123$ ,  $x =$  a) 0, b) 0,25, c) 0,5, d) 0,75, e) 1

### 3.6.4. Morfologi sampel $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Sampel  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  telah disintesis dengan perlakuan *mixing* selama 24 jam dan suhu re-kalsinasi pada 700, 750, 800 dan 900°C. Untuk mengamati morfologi (bentuk, posisi dan ukuran partikel) sampel dalam skala nano dilakukan karakterisasi *transmission electron microscopy* (TEM). Hasil karakterisasi TEM sampel  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (750, 800 dan 900°C) diperlihatkan pada Gambar 3.24. Morfologi sampel  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  memperlihatkan distribusi partikel yang homogen dengan rerata ukuran partikel antara 20-30 nm. Sedangkan morfologi sampel  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  mempunyai ukuran partikel antara 30-350 nm dengan distribusi yang kurang homogen, yang mengindikasikan bahwa sudah mulai terjadi aglomerasi partikel dengan penambahan suhu re-kalsinasi pada 900°C. Dari hasil ukuran partikel yang diperoleh pada sampel Nd-123 dan  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  pada suhu pemanasan yang sama, maka dapat dikatakan bahwa parameter *mixing* sangat menentukan dalam menghasilkan partikel dalam skala nanometer.



Gambar 3.24. Morfologi TEM sampel  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan suhu re-kalsinasi : (a)  $750^\circ\text{C}$ , (b)  $800^\circ\text{C}$  dan (c)  $900^\circ\text{C}$

## BAB 4

# STRUKTUR KRISTAL

Proses sintesis sampel  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ,  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan *wet-mixing method* (uraian pada BAB 3) sudah berhasil dilakukan dengan prosentase fraksi berat atau kemurnian fasa Nd-123 yang tinggi. Beberapa informasi penting telah diperoleh. *Pertama*, penambahan suhu re-kalsinasi mampu meningkatkan prosentase fraksi berat. *Kedua*, suhu re-kalsinasi  $970^\circ\text{C}$  merupakan suhu optimal pembentukan kristal  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan *wet-mixing method* pada penelitian ini, dan *ketiga*, fraksi berat terbesar yaitu 99,1 % diperoleh pada sampel  $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .

Pada BAB 4 dilaporkan analisis struktur bahan serbuk berdasarkan data difraksi sinar-X, neutron dan sinkrotron dengan metode *Rietveld* menggunakan program *Rietica* (B. A. Hunter 1997) dan *FullProf* (C.J. Rodriguez 2001). Informasi yang diperoleh dari hasil analisis *Rietveld* yaitu harga faktor *reliability*, harga parameter kisi, ortorombisitas, dan faktor hunian (*site occupancy*).

Seperti telah dijelaskan pada bab sebelumnya (BAB 2), bahwa struktur kristal superkonduktor  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (Y-123) maupun  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (RE-123) adalah ortorombik yang terdiri dari *tri-perovskite* (T. Chatterji 2006). Sedangkan sifat superkonduktornya sangat dipengaruhi oleh kandungan oksigen yang terdapat dalam senyawa tersebut.

Dalam superkonduktor sistem Y-123 maupun RE-123, terdapat lapisan-lapisan yaitu blok *reservoir*-muatan dan blok aktif (lapisan superkonduksi). Dari aspek mekanika fluksoid blok *reservoir*-muatan yang memisahkan dua blok aktif terdekat berperan sebagai faktor yang menentukan besar kecilnya efek *pinning* dalam bahan superkonduktor. Dari gambar 2.8 terlihat bahwa lapisan  $\text{CuO-BaO-CuO}_2$  merupakan blok *reservoir*-muatan, sedangkan lapisan  $\text{CuO}_2\text{-Y(RE)-CuO}_2$  merupakan blok aktif.

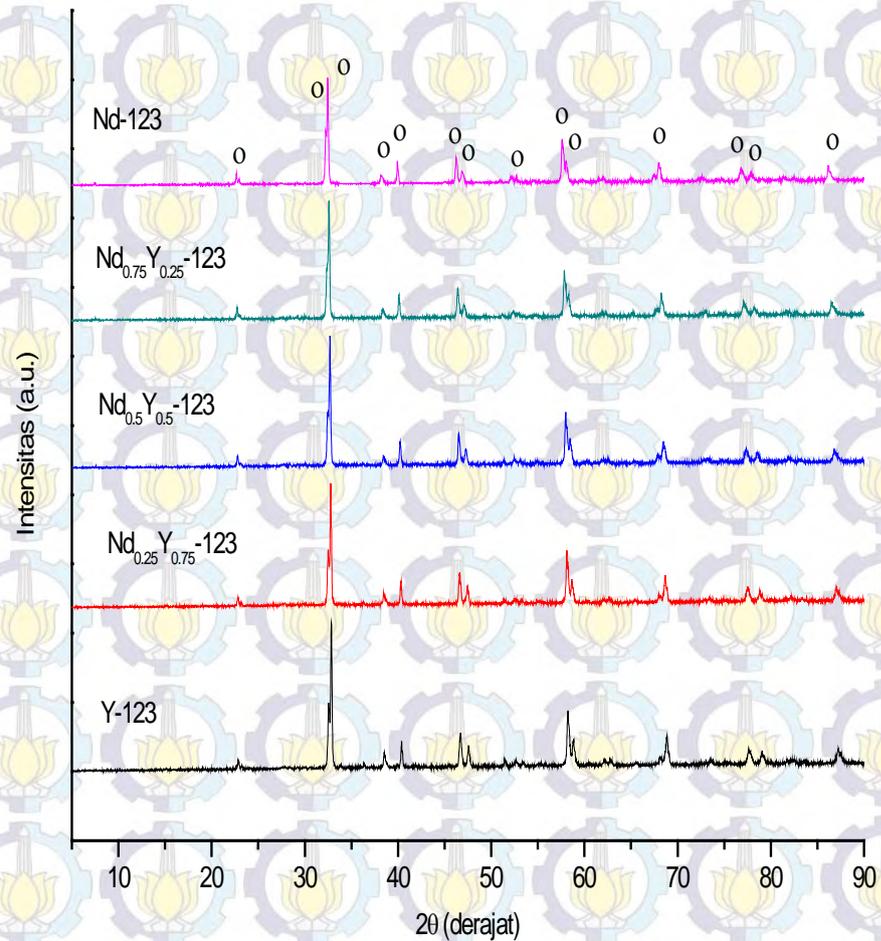
#### 4.1. Pola Difraksi XRD, HRPD dan SRD

Seperti telah dijelaskan pada BAB 2, bahwa neutron dihamburkan oleh inti dan momen magnetik atom, sedangkan sinar-X dihamburkan oleh elektron. Intensitas sinar-X umumnya lebih besar dibandingkan intensitas neutron, sehingga karakterisasi XRD lebih tepat digunakan untuk identifikasi fasa dan perhitungan komposisi fasa.

Sinar-X berinteraksi dengan elektron, dan karena luas awan elektron yang mengelilingi inti sebanding dengan jarak antar atom, maka faktor bentuk  $f(Q)$  menurun cukup cepat dengan meningkatnya  $Q$ . Hal tersebut dapat menimbulkan masalah dalam eksperimen sinar-X, ketika ada hamburan *background* seperti hamburan *Compton*, baik dari sampel maupun dari lingkungan, karena rasio sinyal terhadap *background* sangat berkurang pada sudut tinggi. Sedangkan interaksi neutron dengan inti mempunyai rentang yang sangat pendek ( $10^{-15}$  m), jauh lebih pendek dibandingkan jarak antar atom ( $10^{-10}$  m) sehingga panjang hamburan  $b$  tidak bergantung pada vektor hamburan  $Q$ . Dengan demikian hasil karakterisasi neutron lebih akurat digunakan untuk analisis struktur dibandingkan hasil karakterisasi XRD (K. Skold 1986).

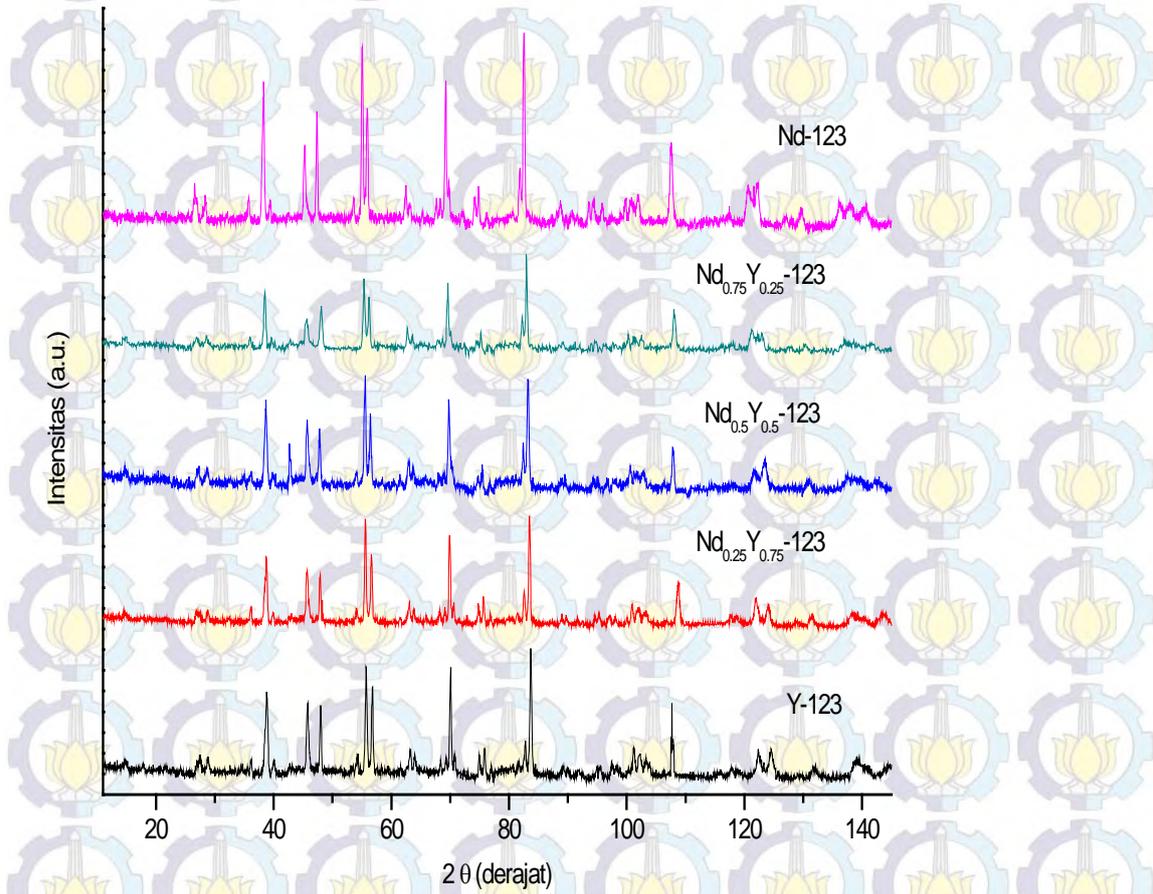
Pada penelitian ini dilakukan karakterisasi neutron dengan *high resolution powder diffractometer* (HRPD) dan *synchrotron-ray diffraction* (SRD) untuk analisis struktur. Sampel yang mengandung unsur Nd dan Y dapat dikarakterisasi dengan HRPD yaitu sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x = 0, 0,25, 0,50, 0,75, 1$ ). Sedangkan sampel yang mengandung unsur Eu dan Gd yaitu sampel  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan satu, dua dan tiga kombinasi RE (kecuali Nd-123) tidak bisa dikarakterisasi dengan HRPD karena faktor penyerapan unsur Eu dan Gd terlalu besar, sehingga hanya sebagian kecil neutron yang dapat dihamburkan. Oleh karena itu, khusus untuk sampel  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (RE = Nd, Eu, Gd) dikarakterisasi dengan SRD yang dilakukan di KEK (*Kō Enerugi Kasokuki Kenkyū Kikō*) atau *The High Energy Accelerator Research Organization*, Jepang.

Pola difraksi sinar-X semua sampel YBCO yang disubstitusi unsur Nd pada komposisi kimia  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x = 0, 0,25, 0,50, 0,75, 1$ ) pada suhu re-kalsinasi ( $T_{\text{rc}}$ )  $970^\circ\text{C}$  selama 10 jam diperlihatkan pada Gambar 4.1.



Gambar 4.1. Pola difraksi sinar-X ( $\text{CuK}\alpha$  radiation) superkonduktor  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$  ( $x=0, 0,25, 0,5, 0,75, 1$ ) dengan  $T_{\text{rc}}$   $970^\circ\text{C}$  selama 10 jam. Simbol : (o)  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$ . Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*.

Pola difraksi neutron (HRPD) semua sampel YBCO yang disubstitusi dengan unsur Nd pada komposisi kimia  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x = 0, 0,25, 0,50, 0,75, 1$ ) dengan  $T_{rc}$   $970^\circ\text{C}$  selama 10 jam diperlihatkan pada Gambar 4.2.



Gambar 4.2. Pola difraksi neutron (HRPD) dengan panjang gelombang  $\lambda = 1,819479 \text{ \AA}$  untuk sampel superkonduktor  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x=0, 0,25, 0,5, 0,75, 1$ ) dengan  $T_{rc}$   $970^\circ\text{C}$  selama 10 jam. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*.

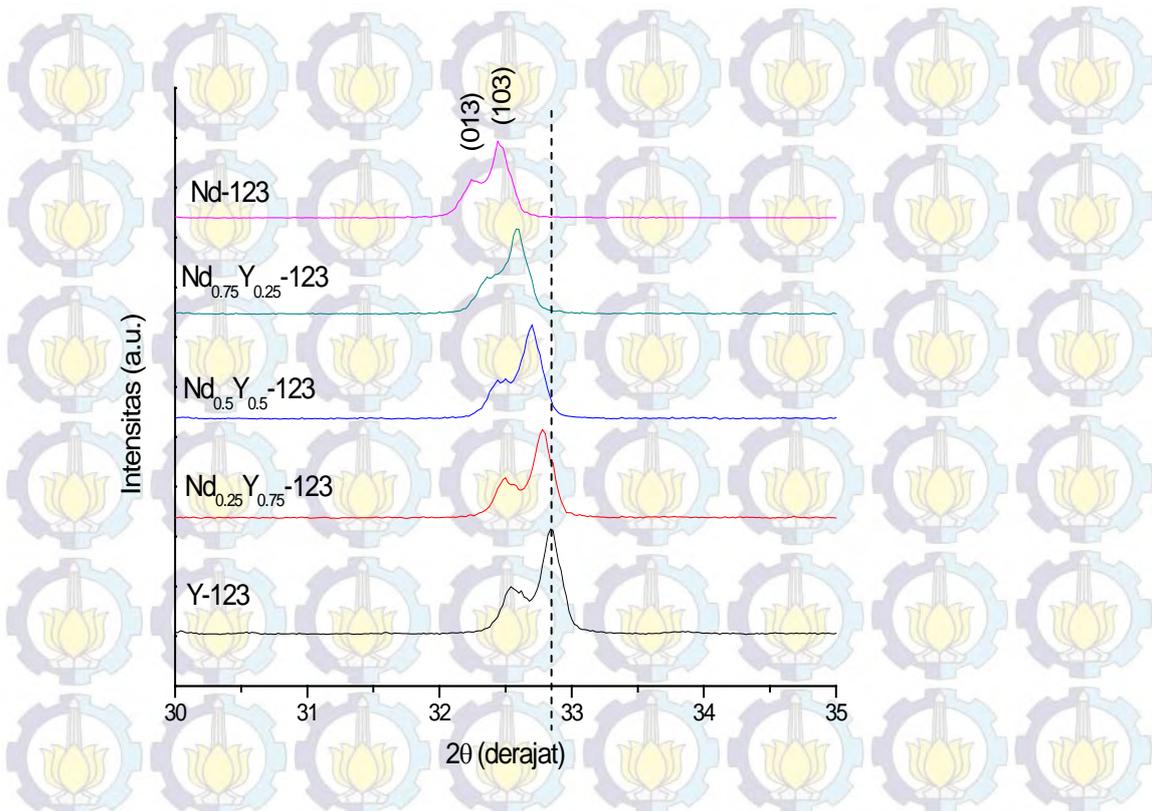
Secara umum, puncak-puncak yang dihasilkan dari karakterisasi XRD dan HRPD memperlihatkan puncak tajam yang menandakan bahwa kristalisasi sudah terjadi dengan baik. Pola difraksi neutron (HRPD) hampir sama untuk semua sampel, baik posisi sudut  $2\theta$  maupun intensitasnya dan di beberapa sudut masih memperlihatkan adanya *overlapping* (puncak yang belum terpisah secara sempurna).

Penambahan unsur Nd pada superkonduktor YBCO menghasilkan pergeseran sudut puncak difraksi sinar-X dan neutron. Pergeseran sudut puncak difraksi sinar-X pada sudut  $2\theta$  antara  $30$  dan  $35^\circ$  yang berhubungan dengan substitusi ion  $Y^{3+}$  oleh  $Nd^{3+}$  diperlihatkan pada Gambar 4.3, sedangkan pergeseran sudut puncak difraksi neutron (HRPD) diperlihatkan pada Gambar 4.4. Pergeseran sudut puncak difraksi sinar-X maupun neutron bergerak menuju  $2\theta$  lebih kecil dengan penambahan jumlah Nd. Hal ini diakibatkan oleh perbedaan jari-jari ion, dimana jari-jari ion  $Nd^{3+}$  ( $112,3$  pm) lebih besar dibandingkan jari-jari ion  $Y^{3+}$  ( $104$  pm) (R.D. Shannon 1976). Secara teori, diketahui hubungan rumusan Bragg

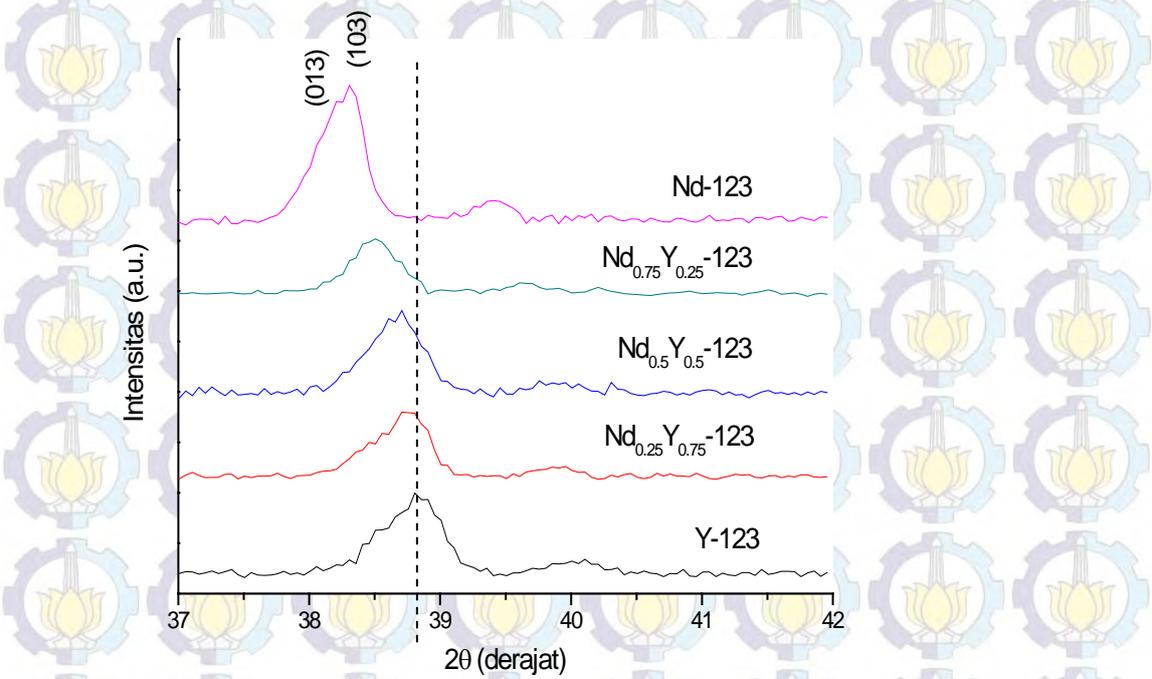
$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad (4-1)$$

$$\text{dan } \frac{1}{d_{hkl}} = \sqrt{\frac{h^2}{a^2} + \frac{k^2}{b^2} + \frac{l^2}{c^2}} \quad (4-2)$$

dengan  $\lambda$  adalah panjang gelombang sinar datang,  $d$  adalah jarak antar bidang,  $\theta$  adalah sudut antara sinar datang dan bidang hamburan,  $(hkl)$  adalah indeks Miller dan  $(a, b, c)$  adalah besaran sel satuan ke arah sumbu  $x, y$  dan  $z$ . Jari-jari ion atau atom yang membentuk satu sel satuan akan mempengaruhi besaran sel satuan  $a, b$  dan  $c$ . Semakin kecil jari-jari atom maka besaran sel satuan juga semakin kecil dan dari hubungan rumusan Bragg mengakibatkan nilai  $\theta$  menjadi semakin besar. Urutan pergeseran puncak difraksi dari  $2\theta$  paling kecil menuju  $2\theta$  paling besar yaitu Nd-123,  $Nd_{0,25}Y_{0,75}$ -123,  $Nd_{0,5}Y_{0,5}$ -123,  $Nd_{0,75}Y_{0,25}$ -123, Y-123. Hal yang sama terjadi pada urutan pergeseran puncak difraksi neutron. Dari Gambar 4.3 dan 4.4 terlihat bahwa puncak difraksi sinar-X lebih halus (*smooth*) dibandingkan puncak difraksi neutron. Difraksi sinar-X sudah memperlihatkan pemisahan antara puncak dengan indeks Miller  $(013)$  dan  $(103)$  yang terletak pada sudut  $2\theta$  antara  $30$  dan  $35^\circ$ , sedangkan untuk difraksi neutron, puncak dengan indeks Miller  $(013)$  dan  $(103)$  yang terletak pada sudut  $2\theta$  antara  $37$  dan  $42^\circ$  masih terlihat tumpang tindih (*overlapping*).



Gambar 4.3. Pergeseran sudut puncak difraksi sinar-X dengan indeks Miller (013) dan (103) hasil krakterisasi XRD (Gambar 4.1). Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*.

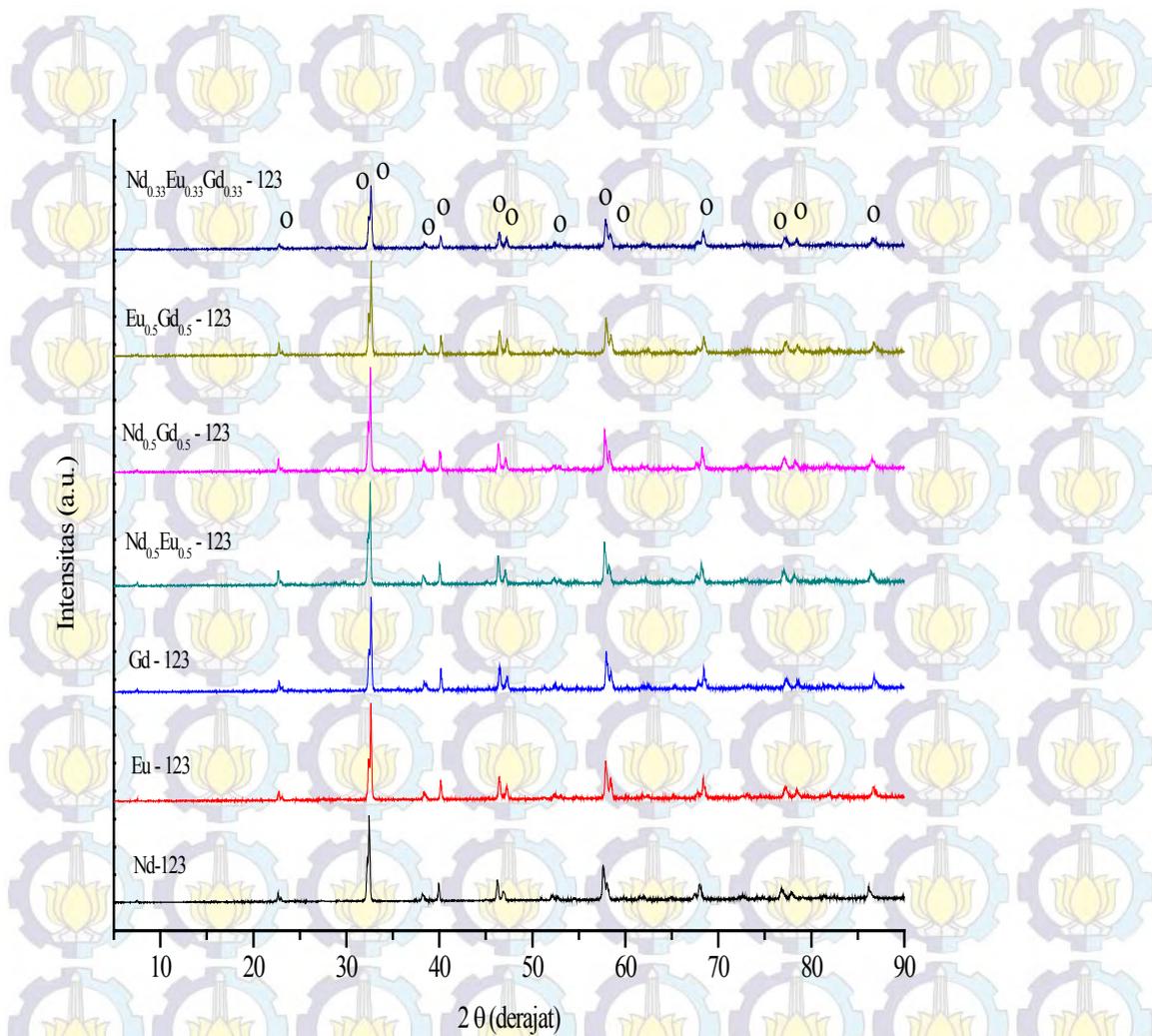


Gambar 4.4. Pergeseran sudut puncak difraksi neutron dengan indeks Miller (013) dan (103) hasil karakterisasi HRPD (Gambar 4.2). Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*.

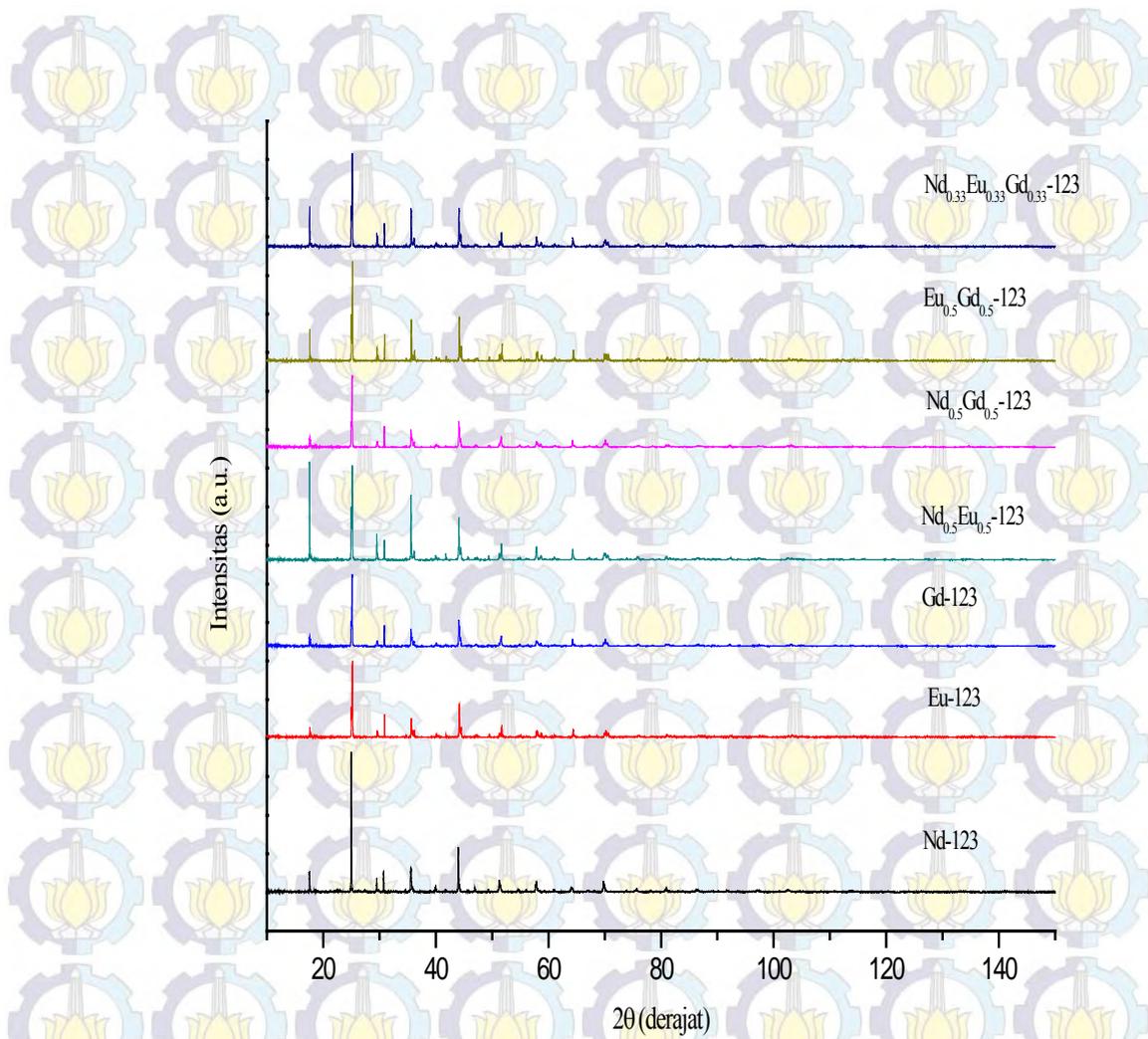
Pola difraksi sinar-X (XRD) dan sinkrotron (SRD) untuk semua sampel REBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> (RE-123) dengan satu, dua, tiga kombinasi RE, masing-masing diperlihatkan pada Gambar 4.5 dan 4.6. Pola difraktogram XRD maupun SRD memperlihatkan puncak tajam yang menandakan sampel sudah mengkristal dengan baik. Khusus untuk SRD, intensitas puncak yang dihasilkan masing-masing sampel beragam pada sudut yang sama, beberapa puncak mempunyai intensitas sama pada posisi sudut 2θ tertentu, di sisi lain beberapa puncak pada posisi sudut 2θ yang sama mempunyai intensitas berbeda. Perbedaan intensitas yang cukup signifikan terlihat pada puncak untuk bidang refleksi Bragg (010) pada sudut 2θ sekitar 17,7° dengan intensitas paling kecil sebesar 83,6 cps pada sampel Nd<sub>0,5</sub>Gd<sub>0,5</sub>-123 dan intensitas tertinggi sebesar 993,5 cps diperoleh pada sampel Nd<sub>0,5</sub>Eu<sub>0,5</sub>-123.

Sama dengan kasus yang terjadi pada sampel Nd<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>-123, kombinasi satu, dua dan tiga RE pada sampel RE-123 juga menghasilkan pergeseran sudut puncak difraksi seperti diperlihatkan pada Gambar 4.7 (XRD) dan 4.8 (SRD). Pergeseran sudut puncak difraksi diakibatkan oleh perbedaan jari-jari ion, dimana jari-jari ion Nd<sup>3+</sup> (112.3 pm) lebih besar dibandingkan jari-jari ion Eu<sup>3+</sup> (104 pm) dan Gd<sup>3+</sup> (R.D. Shannon 1976). Dari gambar terlihat pergeseran sudut puncak difraksi bergerak ke posisi 2θ lebih besar dengan urutan pergeseran sudut dari yang terkecil sampai terbesar yaitu Nd-123, Nd<sub>0,5</sub>Eu<sub>0,5</sub>-123, Nd<sub>0,5</sub>Gd<sub>0,5</sub>-123, Nd<sub>0,33</sub>Eu<sub>0,33</sub>Gd<sub>0,33</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, Eu-123, Eu<sub>0,5</sub>Gd<sub>0,5</sub>-123 and Gd-123. Interpretasi yang sama dengan sampel Nd<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>-123 juga berlaku pada sampel RE-123 yang mengindikasikan bahwa semakin kecil jari-jari ion, maka pergeseran sudutnya semakin besar.

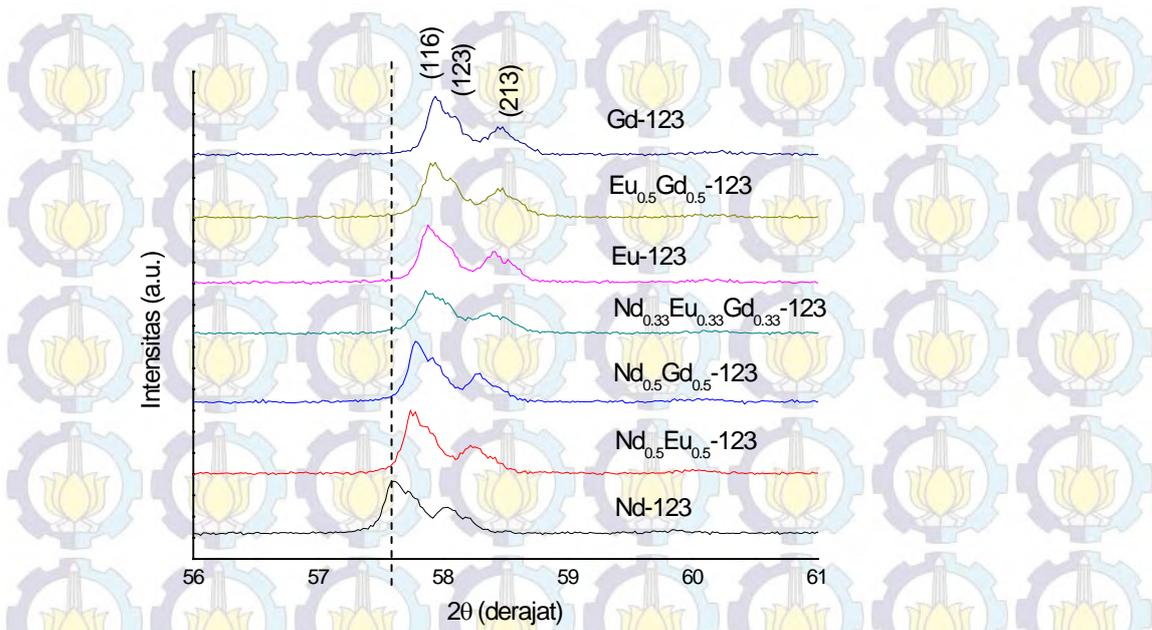
Seperti telah dijelaskan pada BAB 3, hasil karakterisasi XRD untuk sampel Nd<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> (x = 0, 0,25, 0,5, 0,75, 1) dan sampel REBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> (satu, dua, tiga kombinasi RE), sudah dimanfaatkan untuk identifikasi fasa dan perhitungan komposisi fasa. Pada sub bab ini, hasil karakterisasi XRD, HRPD dan SRD dimanfaatkan untuk analisis kualitatif pada bahan serbuk dengan metode *Rietveld* menggunakan program *Rietica* (B. A. Hunter 1997) dan *FullProf* (C.J. Rodriguez 2001).



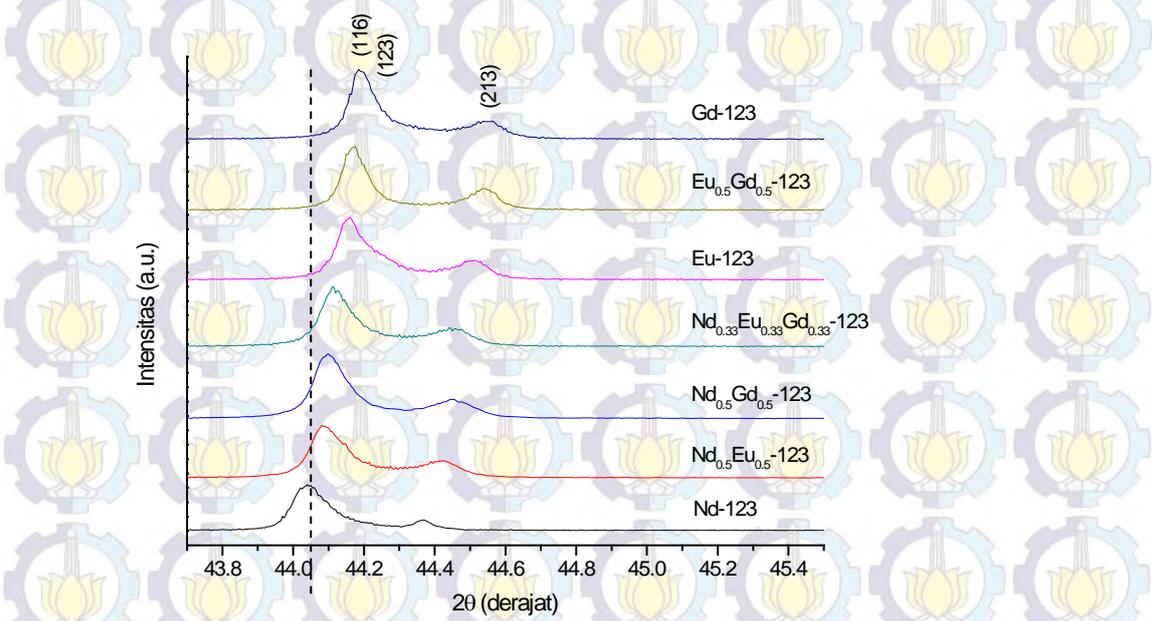
Gambar 4.5. Pola XRD ( $CuK\alpha$  radiation) sampel RE-123 dengan satu, dua dan tiga kombinasi RE. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*.



Gambar 4.6. Pola difraktogram *synchrotron-ray diffraction* (SRD) sampel RE -123 dengan satu, dua dan tiga kombinasi RE. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*.



Gambar 4.7. Pergeseran puncak dengan indeks Miller (116), (123) dan (213) hasil karakterisasi XRD untuk sampel RE-123 dengan satu, dua dan tiga kombinasi RE. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*.



Gambar 4.8. Pergeseran puncak dengan indeks Miller (116), (123) dan (213) hasil karakterisasi SRD untuk sampel RE-123 dengan satu, dua dan tiga kombinasi RE. Ket: (a.u.) = *arbitrary unit*.

## 4.2. Analisis Rietveld

Analisis Rietveld adalah sebuah metode pencocokan tak linier kurva pola difraksi terhitung (model) dengan pola difraksi teramati yang didasarkan pada data struktur kristal dengan menggunakan metode kuadrat terkecil (*least squares*) (S. Pratapa 2002).

Analisa Rietveld tidak lain adalah problema optimasi fungsi non-linier dengan pembatas (*constrains*) atau dalam bahasa matematik dinyatakan sebagai

$$f(x) = \sum w_i [y_i(o) - y_i(c)]^2 \quad (4-2)$$

dengan  $\sum$  menunjukkan penjumlahan yang dilakukan terhadap semua titik pada pola difraksi mulai dari titik ke- $i$  hingga ke- $N$ . Sedangkan  $w_i = 1/y_i(o)$  adalah faktor bobot (*weighting factor*),  $y_i(o)$  adalah intensitas terukur dan  $y_i(c)$  adalah intensitas terhitung pada titik data ke- $i$ .

Ukuran yang menunjukkan derajat persesuaian antara profil difraksi hasil perhitungan dan profil difraksi hasil pengamatan dinyatakan dengan  $R_{wp}$  (*weighted profil factor*),  $R_p$  (*profil factor*),  $R_e$  (*expected weighted profil factor*),  $S$  (*goodness-of-fit*),  $R_B$  (*Bragg factor*), yang didefinisikan sebagai

$$R_{wp} = \frac{\left\{ \sum w_i [y_i(o) - y_i(c)]^2 \right\}^{1/2}}{\left\{ \sum w_i [y_i(o)]^2 \right\}^{1/2}}, \quad R_e = \left[ \frac{N - P}{\sum_i w_i y_i^2} \right]$$

$$R_p = \frac{\left\{ \sum |y_i(o) - y_i(c)| \right\}}{\left\{ \sum y_i(o) \right\}}, \quad R_B = \frac{\sum_i |I_i - I_{ic}|}{\sum_i I_i}$$

$$GoF = S = \left[ \frac{R_{wp}}{R_e} \right] \quad (4-3)$$

dengan  $N$  adalah jumlah titik data,  $P$  adalah jumlah parameter yang terlibat dalam sebuah penghalusan,  $I_i$  dan  $I_{ic}$  adalah intensitas-intensitas terpadu terukur dan terhitung untuk sebuah refleksi Bragg. Harga faktor  $R$  yang kecil menunjukkan *baiknya* persesuaian antara pola difraksi hasil pengamatan dan pola difraksi hasil perhitungan.

Analisis data difraksi sampel Nd-123 dilakukan dengan asumsi bahwa cuplikan atau sampel mempunyai sistem kristal ortorombik dengan grup ruang Pmmm No. 47.

Proses penghalusan parameter-parameter puncak difraksi telah dilakukan pada *background* dengan mode *6-coefficients polynomial function*, pendekatan bentuk puncak *Voigt (How. Asym)*, parameter *full width at half maximum* (FWHM), faktor skala, parameter kisi (a, b, c), posisi atom ke arah sumbu z untuk atom Ba, Cu(2), O(1), O(2) dan O(3). Pada proses penghalusan parameter termal dan semua faktor hunian (*occupancy*) pada semua posisi atom dibuat konstan (S. Pratapa 2002).

### 4.3. Hasil *Refinement*

Pola hasil penghalusan parameter-parameter puncak difraksi hasil karakterisasi XRD, HRPD dan SRD untuk sampel Nd-123 dengan suhu re-kalsinasi 970°C selama 10 jam ditunjukkan pada Gambar 4.9 yang merupakan pola difraksi hasil pengamatan yang ditampilkan bersama dengan pola difraksi hasil perhitungan.

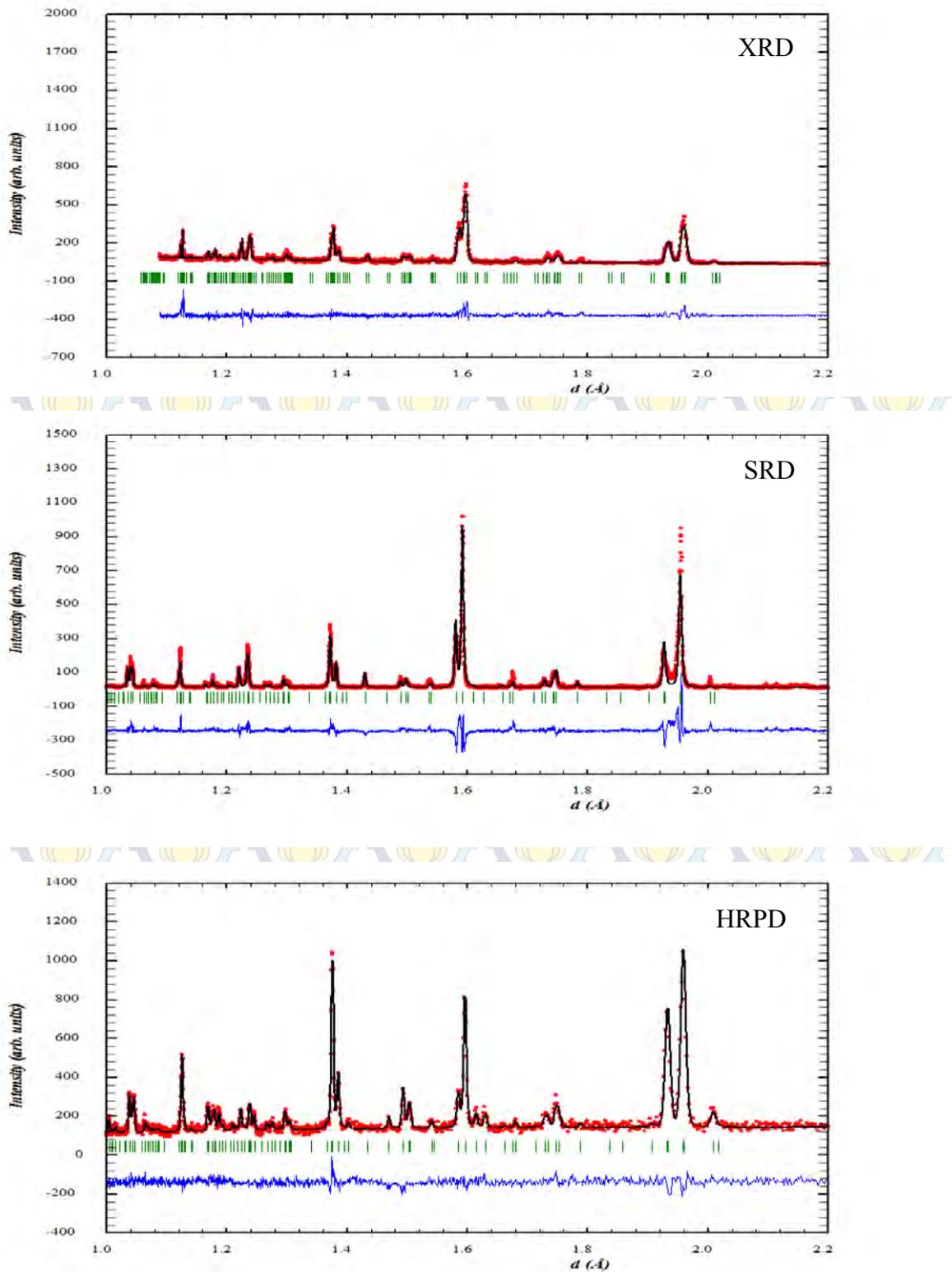
Faktor *reliability* (R) hasil penghalusan parameter-parameter puncak difraksi XRD, HRPD dan SRD untuk sampel Nd-123 dengan suhu re-kalsinasi 970°C selama 10 jam diperlihatkan pada Tabel 4.1 yang meliputi faktor profil ( $R_p$ ), faktor profil terbobot ( $R_{wp}$ ), faktor Bragg ( $R_B$ ), kuadrat *goodness-of-fit* ( $S^2$ ). Tabel tersebut juga menampilkan nilai parameter kisi dari semua sampel XRD, HRPD dan SRD.

Dari tabel terlihat bahwa harga faktor R ( $R_{wp}$ ,  $R_p$  dan  $R_e$ ) yang menyatakan kualitas kecocokan antara intensitas hamburan hasil pengamatan dan intensitas hamburan hasil perhitungan lebih kecil dari 20 %. Hal tersebut mengisyaratkan bahwa perbandingan antara optimasi fungsi non-linier dengan pembatas (*constrains*) terhadap intensitas terukur berada di bawah 20 % dan dapat dikatakan bahwa semakin kecil harga faktor R maka kualitas sampel semakin baik. Sedangkan harga S menyatakan perbandingan antara *weighted profile factor* dengan *expected weighted profile factor* yang menjadi indikator apakah kesesuaian antara intensitas terukur dan terhitung dapat diterima atautakah tidak.

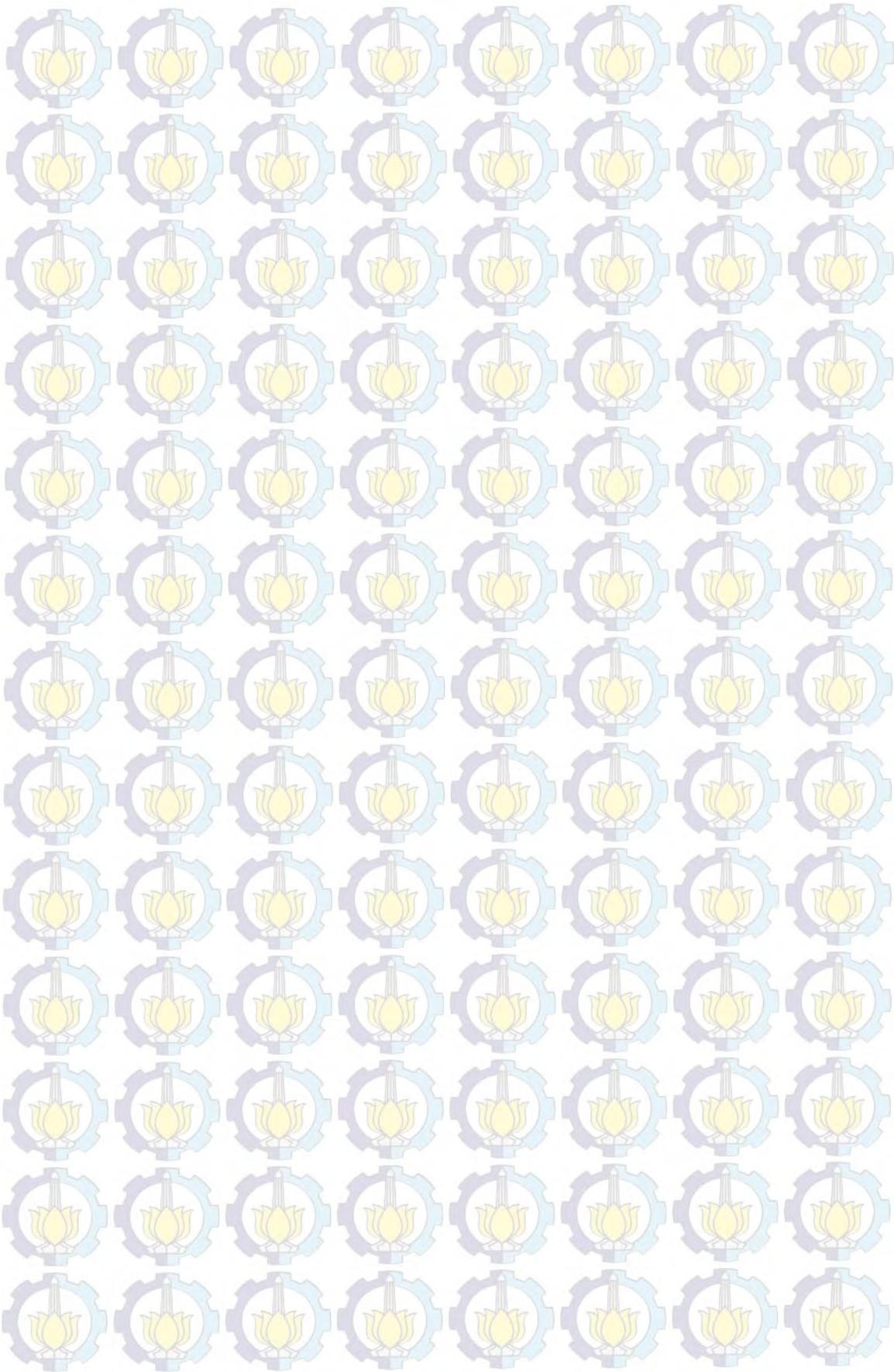
Tabel 4.1. Nilai parameter kisi a, b dan c, faktor *reliability* ( $R_p$ ,  $R_{wp}$ ,  $R_e$ ,  $R_B$ ,  $R_F$ ) dan kuadrat *goodness-of-fit* ( $S^2$ ) untuk sampel Nd-123 dengan suhu re-kalsinasi 970°C selama 10 jam yang merupakan hasil karakterisasi XRD, SRD dan HRPD menggunakan *software FullProf* (C.J. Rodriguez 2001)

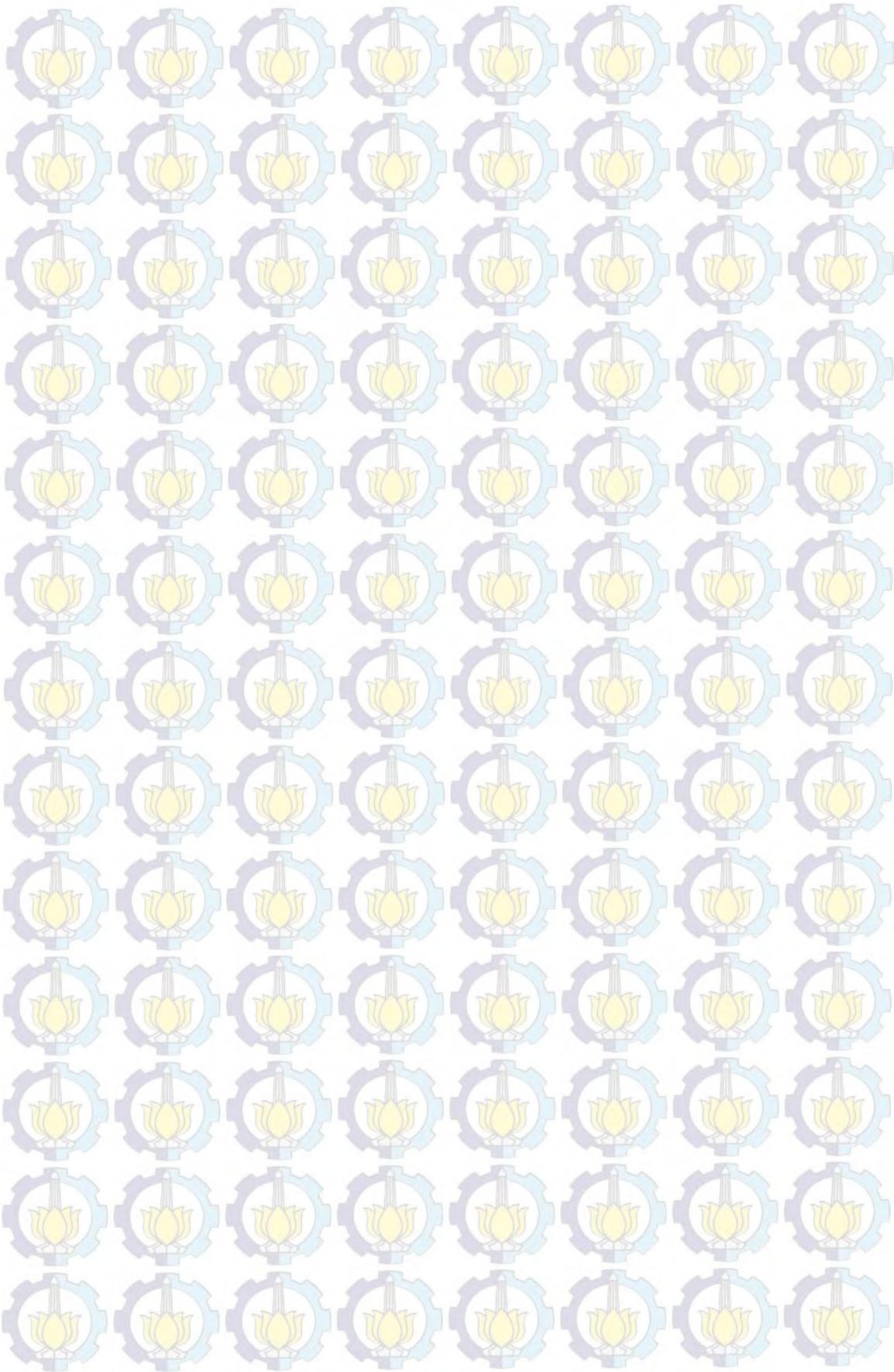
--	Nd-123	Nd-123	Nd-123
--	(XRD)	(SRD)	(HRPD)
a (Å)	3,8722(6)	3,90077(5)	3,8676(9)
b (Å)	3,9224(1)	3,91128(6)	3,9199(3)
c (Å)	11,775(4)	11,744(8)	11,767(9)
$S^2$	1,1	1,2	1,3
$R_p$ (%)	9,4	16,6	6,9
$R_{wp}$ (%)	12,3	22,5	8,7
$R_e$ (%)	11,6	20,3	7,7
$R_B$ (%)	11,2	15,7	11,8
$R_F$ (%)	11,3	9,6	9,1

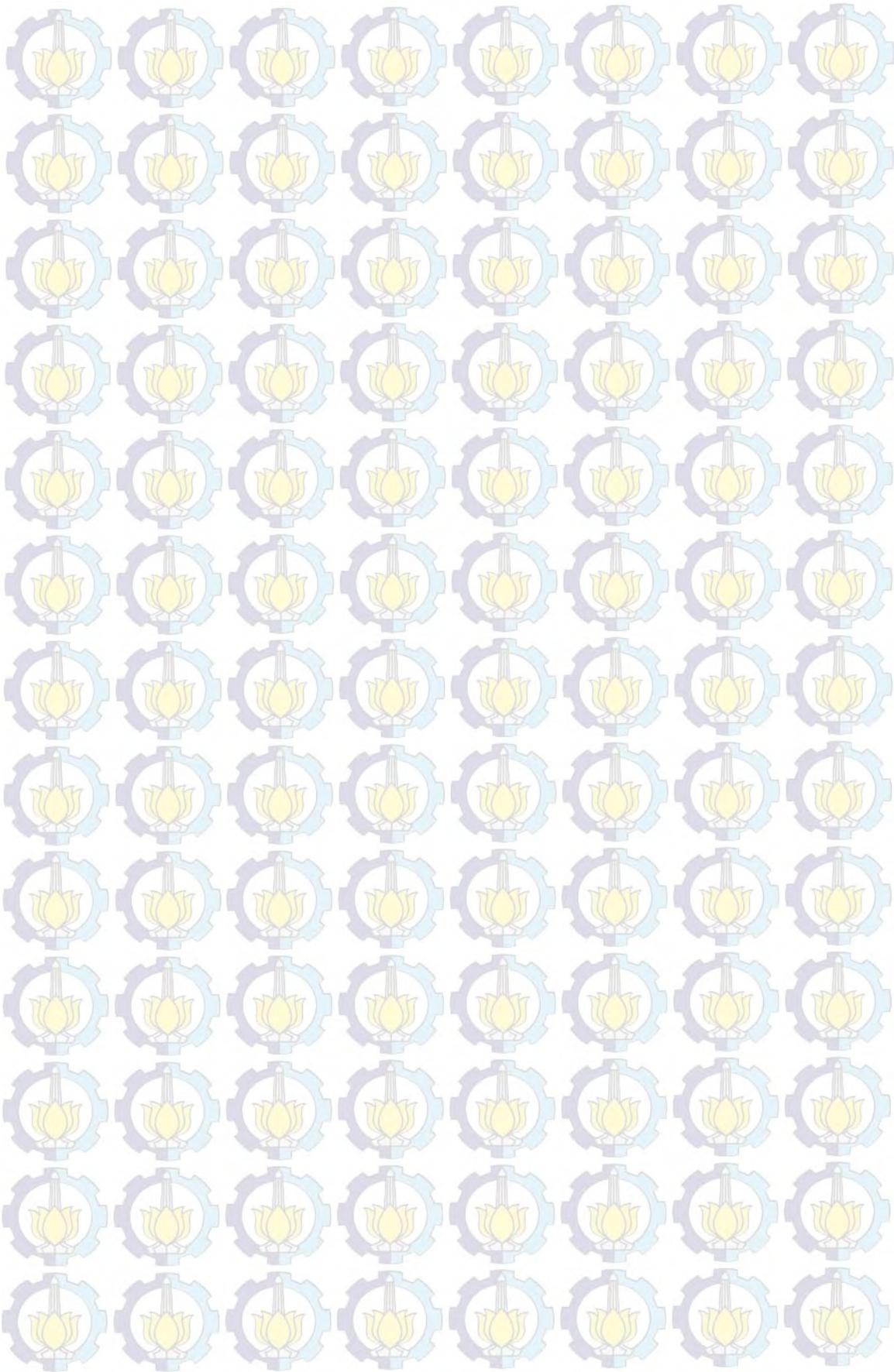
Hasil penghalusan parameter-parameter puncak difraksi (*refinement*) untuk semua sampel yang telah disintesis dengan *wet-mixing method* diperlihatkan pada Tabel 4.2. Tabel 4.2 memperlihatkan nilai parameter kisi, volume sel,  $R_{wp}$ ,  $R_p$ ,  $R_e$  dan  $S^2$  untuk sampel Nd-123 ( $T_{rc} = 650-970^\circ\text{C}$ ,  $t_{rc} = 1$  jam),  $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{-123}$  ( $T_{rc} = 920-970^\circ\text{C}$ ,  $t_{rc} = 1$  jam),  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $T_{rc}=920-970^\circ\text{C}$ ,  $t_{rc} = 1$  jam) ),  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$  ( $T_{rc}=970^\circ\text{C}$ ,  $t_{rc} = 10$  j am) dan RE-123 (kombinasi RE) ( $T_{rc}=970^\circ\text{C}$ ,  $t_{rc} =10$  jam). Penghalusan parameter-parameter puncak difraksi untuk karakterisasi XRD dilakukan dengan menggunakan program *Rietica* (B. A. Hunter 1997), sedangkan untuk karakterisasi HRPD dan SRD menggunakan program *FullProf* (C.J. Rodriguez 2001).

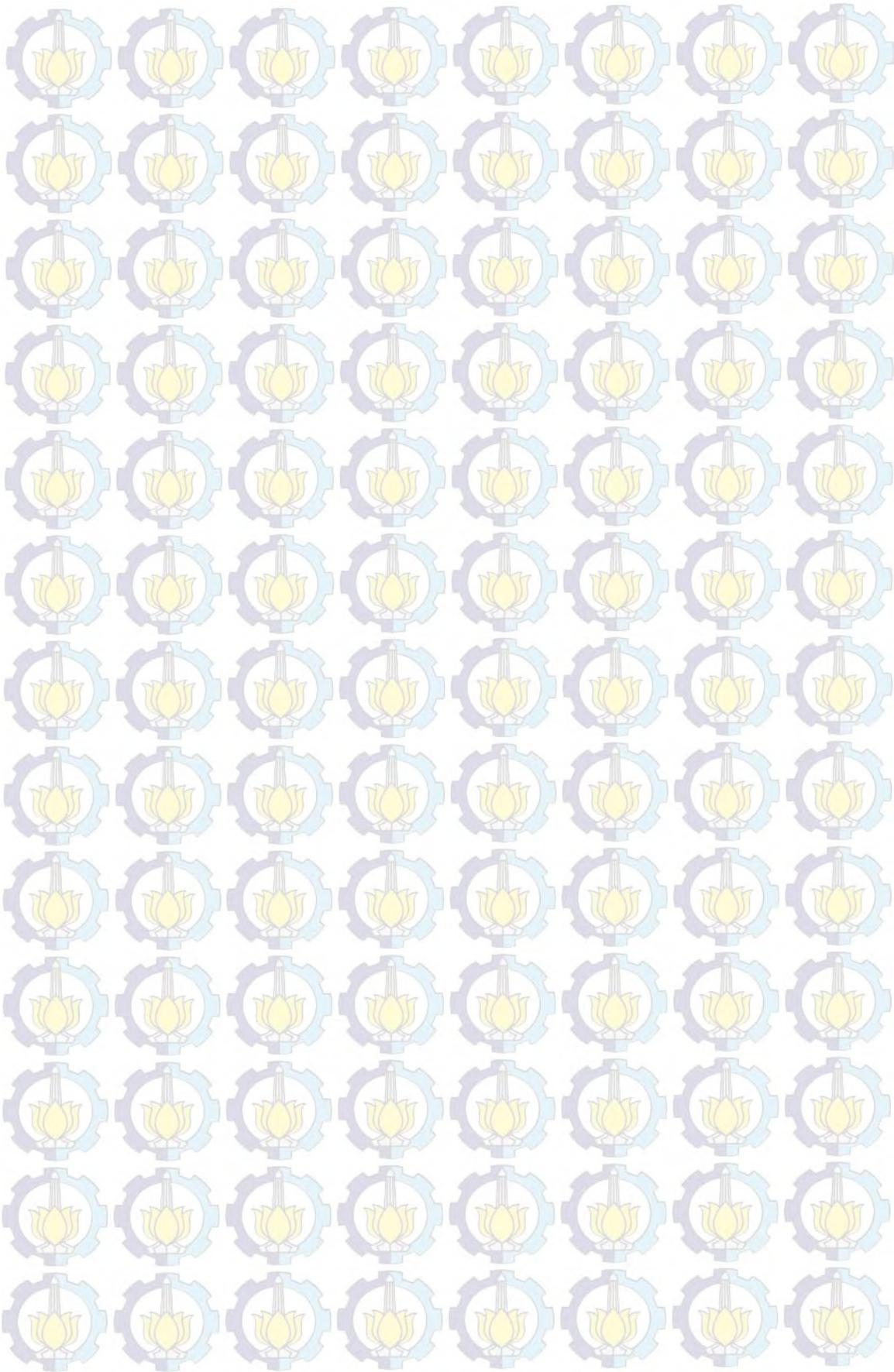


Gambar 4.9. Pola difraksi hasil *refinement* sampel Nd-123 dari hasil karakterisasi XRD, SRD dan HRPD. Hasil pengamatan, hasil perhitungan, selisih harga intensitas hasil pengamatan dan hasil perhitungan, posisi sudut puncak Bragg, masing-masing ditunjukkan warna hitam, warna merah, warna hijau, warna biru.







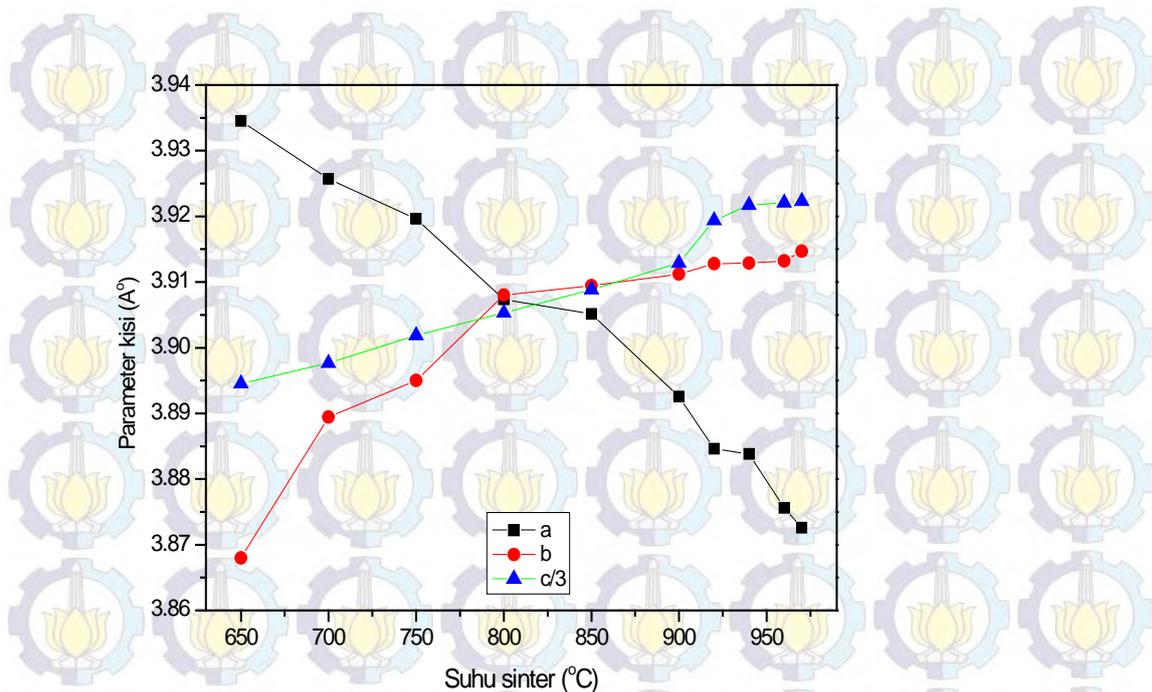


## 4.4. Parameter Kisi

### 4.4.1. Sampel $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Dari hasil penghalusan parameter-parameter pola difraksi pada Tabel 4.2 dapat dibuat kurva hubungan nilai parameter kisi (a, b, c) terhadap suhu re-kalsinasi ( $T_{rc}$ ) untuk sampel  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  seperti diperlihatkan pada Gambar 4.10. Kurva memperlihatkan bahwa nilai parameter kisi ke arah sumbu a menurun, sedangkan nilai parameter kisi ke arah sumbu b dan c meningkat dengan penambahan  $T_{rc}$ . Apabila dibandingkan dengan harga parameter kisi pada PDF nomor 046-0229, dimana konstanta kisi ke arah sumbu a sebesar 3,8799 Å, b sebesar 3,9161 Å dan c sebesar 11,7645 Å, maka nilai a pada Gambar 4.10 berkurang dari 3,935 Å pada suhu 650°C menuju 3,873 Å pada suhu 970°C. Dan akan semakin berkurang pada  $T_{rc}$  lebih tinggi sampai diperoleh nilai jenuh pada  $T_{rc}$  tertentu. Hal yang sama diperoleh pada parameter kisi ke arah sumbu b dan c. Nilai parameter kisi b bertambah besar dari 3,868 Å pada suhu 650°C menuju 3,917 Å pada suhu 970°C, sedangkan parameter kisi c bertambah besar dari 11,685 Å pada suhu 650°C menuju 11,773 pada suhu 970°C. Hal tersebut mengindikasikan bahwa pola perubahan parameter kisi terhadap perubahan  $T_{rc}$  mencerminkan evolusi pertumbuhan kristal  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  sehingga pada suhu tertentu (suhu yang lebih tinggi) parameter kisi tidak mengalami perubahan yang signifikan.

Harga faktor *reliability* ( $R_{wp}$ ,  $R_p$ ,  $R_e$ ) untuk sampel  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  terlihat bervariasi (Tabel 4.2) sehingga tidak bisa dibuat pola perubahan suhu re-kalsinasi terhadap harga R. Akan tetapi secara keseluruhan, semua sampel memperlihatkan harga  $R_{wp}$ ,  $R_p$ ,  $R_e$  lebih kecil atau sama dengan 20 %. Sedangkan harga kuadrat *goodness-of-fit* ( $S^2$ ) menurun dari 3,4 sampai 1,4 dengan penambahan suhu re-kalsinasi dari 650°C sampai 970°C. Hal tersebut mengindikasikan bahwa kecocokan antara intensitas hamburan hasil pengamatan dan intensitas hamburan hasil perhitungan semakin baik dengan penambahan suhu re-kalsinasi. Harga  $S^2$  paling kecil diperoleh pada sampel Nd-123 yang diberi perlakuan suhu re-kalsinasi pada 970°C yang mengindikasikan bahwa suhu tersebut merupakan suhu optimal pembentukan kristal Nd-123.



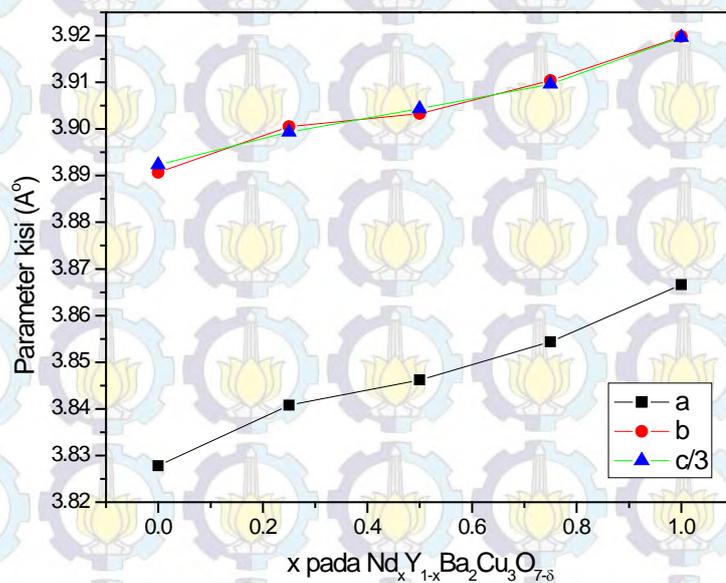
Gambar 4.10. Pola perubahan parameter kisi terhadap penambahan suhu re-kalsinasi dari 650-970°C untuk sampel Nd-123.

#### 4.4.2. Sampel $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Proses penghalusan parameter-parameter pola difraksi (*refinement*) untuk sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan RE-123 (dengan satu, dua dan tiga kombinasi RE) dilakukan dengan analisis *Rietveld* menggunakan program *FullProf*. Sama dengan analisis *refinement* pada sub bab sebelumnya (4.4.1), pada sub bab ini (4.4.2) penghalusan parameter pola difraksi juga dilakukan pada *background* dengan mode *6-coefficients polynomial function*, pendekatan bentuk puncak *Thompson-Cox-Hastings pseudo-Voigt*, parameter *full width at half maximum* (FWHM), faktor skala, parameter kisi (a, b, c), posisi atom ke arah sumbu z untuk atom Ba, Cu(2), O(1), O(2) dan O(3). Parameter termal untuk semua posisi atom telah di *refine* dengan pendekatan isotropik dan semua faktor hunian (*occupancy*) dibuat konstan.

Harga parameter kisi dan volume sel satuan sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  yang merupakan hasil dari penghalusan parameter-parameter pola difraksi dengan analisis *Rietveld* untuk karakterisasi XRD dan HRPD diperlihatkan pada Table 4.2. Dari tabel

terlihat bahwa harga parameter kisi dan volume sel satuan bertambah besar dengan penambahan unsur Nd pada superkonduktor sistem YBCO, baik untuk hasil karakterisasi XRD maupun HRPD. Terdapat perbedaan kecil antara harga parameter kisi yang dihasilkan oleh karakterisasi XRD dan HRPD, yaitu antara 0,0001 dan 0,0069 Å untuk parameter kisi a, antara 0,0005 dan 0,0065 Å untuk parameter kisi b dan antara 0,001 dan 0,006 Å untuk parameter kisi c. Peningkatan harga parameter kisi dan volume sel satuan dengan penambahan jumlah Nd, disebabkan oleh perbedaan jari-jari ion antara  $Y^{3+}$  dan  $Nd^{3+}$ , dimana jari-jari ion  $Nd^{3+}$  yang lebih besar dari jari-jari ion  $Y^{3+}$  mengakibatkan terjadinya pelebaran struktur kristal ke semua arah sumbu (a, b dan c), sehingga mengakibatkan perbedaan parameter kisi dan volume sel satuan. Dari data yang diperlihatkan pada tabel 4.2, dapat dibuat urutan parameter kisi dari yang terkecil sampai yang terbesar yaitu Y-123,  $Nd_{0,25}Y_{0,75}$ -123,  $Nd_{0,5}Y_{0,5}$ -123,  $Nd_{0,75}Y_{0,25}$ -123 dan Nd-123 seperti terlihat pada Gambar 4.11.



Gambar 4.11. Pola perubahan parameter kisi terhadap variasi jumlah substitusi Nd pada superkonduktor  $Nd_xY_{1-x}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$

Perubahan parameter kisi juga diamati oleh Masahiko Inagaki (M. Inagaki 2006) pada sampel NdY-123 yang disintesis pada suhu sinter 1213 K (15 jam) dalam aliran gas argon, dilanjutkan dengan sinter pada suhu 1193 K (15 jam) dalam udara dan perlakuan anil pada 823 K (15 jam) dalam aliran oksigen. Hasil penelitian Inagaki memperlihatkan bahwa penambahan komposisi Nd pada senyawa NdY-123 mengakibatkan penambahan harga parameter kisi. Inagaki menduga bahwa ukuran ion RE mempengaruhi energi aktivasi oksigen antara posisi O(4) dan O(5) yang mengakibatkan terjadinya distorsi lokal dan merubah jarak antar atom.

Hasil yang sama diperoleh oleh Zhenping Chen (Z. Chen 2006) dimana substitusi  $RE^{3+}$  dalam senyawa YBCO menyebabkan perubahan struktur parameter kisi (a, b, c) tetapi tidak mengubah struktur ortorombik sistem YBCO, walaupun ion unsur tanah jarang mempunyai jari-jari ion dan momen magnetik lokal yang berbeda. Pada sisi lain, perubahan rapat elektron lokal dengan RE yang berbeda mengindikasikan bahwa perubahan struktur parameter dengan substitusi RE mengakibatkan perubahan rapat elektron tidak hanya di sekitar Y tetapi juga di sekitar Cu dan O. Karena substitusi  $RE^{3+}$  terjadi pada posisi Y antar bidang  $CuO_2$ , maka perubahan energi ikat pertama kali terjadi pada atom Cu(2) dan O(2). Sedangkan perubahan rapat elektron pada atom Cu(1) adalah akibat dari substitusi  $RE^{3+}$ . Beberapa percobaan telah membuktikan bahwa semakin kecil ion  $RE^{3+}$  maka akan memperpendek ikatan Cu-O dalam arah a, b dan menambah rapat elektron pada atom Cu (Y. Zhao 1990; Q.R. Zhang 1993).

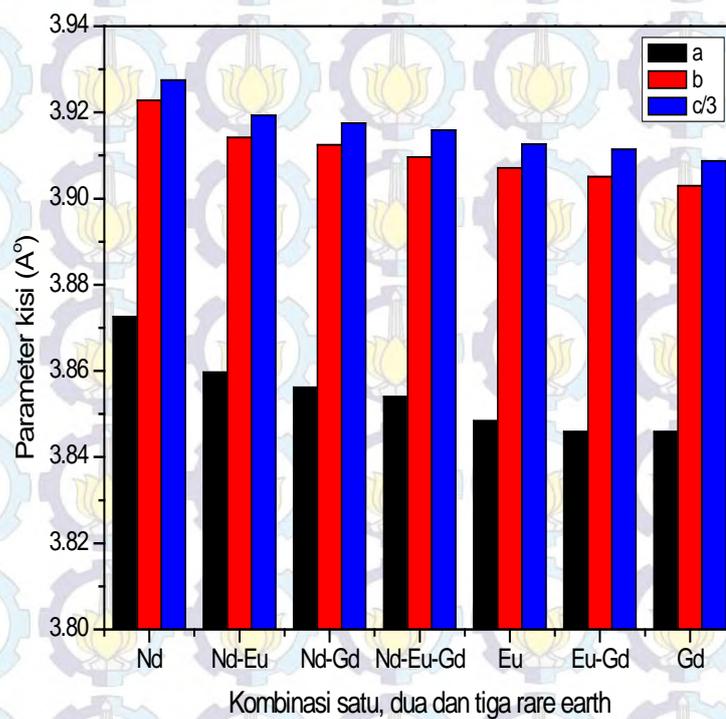
Harga faktor *reliability* ( $R_{wp}$ ,  $R_p$ ,  $R_e$ ) untuk sampel  $Nd_xY_{1-x}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  ( $x=0, 0,25, 0,5, 0,75, 1$ ) (Tabel 4.2) hasil karakterisasi XRD dan HRPD lebih kecil dari 20%, sedangkan harga  $S^2$  hasil karakterisasi XRD adalah 1,4 dan 1,5, hasil karakterisasi HRPD berkisar antara 1,1 dan 1,7. Hasil tersebut mendukung hipotesa yang dikemukakan pada sub bab 3.5.2, bahwa suhu re-kalsinasi  $970^\circ C$  merupakan suhu optimal yang menghasilkan fasa impuritas paling sedikit dalam pembentukan struktur kristal  $NdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  maupun  $Nd_xY_{1-x}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ .

#### 4.4.3. Sampel $REBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

Harga parameter kisi dan volume sel satuan sampel  $REBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  dengan berbagai kombinasi unsur tanah jarang yang merupakan hasil dari penghalusan pola difraksi untuk karakterisasi XRD dan SRD diperlihatkan pada Table 4.2. Dari tabel

terlihat bahwa pola perubahan harga parameter kisi dan volume sel satuan yang sama untuk karakterisasi XRD dan SRD, dimana semakin kecil jari-jari ion RE maka nilai parameter kisi (a, b, c) juga semakin kecil. Urutan sampel dengan parameter kisi terbesar sampai yang terkecil, yaitu Nd-123, Nd<sub>0,5</sub>Eu<sub>0,5</sub>-123, Nd<sub>0,5</sub>Gd<sub>0,5</sub>-123, Nd<sub>0,33</sub>Eu<sub>0,33</sub>Gd<sub>0,33</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$</sub> , Eu-123, Eu<sub>0,5</sub>Gd<sub>0,5</sub>-123 dan Gd-123. Hasil tersebut merupakan kebalikan dari hasil pergeseran sudut, dimana semakin besar jari-jari ion mengakibatkan pergeseran sudut semakin kecil, sedangkan parameter kisinya semakin besar.

Pola perubahan harga parameter kisi (a, b, c) terhadap satu, dua dan tiga kombinasi unsur tanah jarang untuk karakterisasi XRD diperlihatkan pada Gambar 4.12.



Gambar 4.12. Pola perubahan parameter kisi a, b, dan c terhadap sampel R E-123 dengan satu, dua dan tiga kombinasi RE

Terdapat perbedaan kecil antara harga parameter kisi yang dihasilkan oleh karakterisasi XRD dan SRD, berkisar antara 0,0036 dan 0,0323 Å untuk parameter kisi

a, antara 0,0012 dan 0,0082 Å untuk parameter kisi b dan antara 0,0106 dan 0,0246 Å untuk parameter kisi c.

Harga faktor *reliability* ( $R_{wp}$ ,  $R_p$ ,  $R_e$ ) untuk sampel REBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> (Tabel 4.2) hasil karakterisasi XRD lebih kecil dari 20 % dan harga  $S^2$  berkisar antara 1,2 dan 1,5. Sedangkan harga faktor *reliability* ( $R_{wp}$ ,  $R_p$ ,  $R_e$ ) sampel REBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> (Tabel 4.2) hasil karakterisasi SRD lebih besar dari 20% dan harga S berkisar antara 1,6 dan 2,6. Perbedaan harga parameter kisi, *reliability* ( $R_{wp}$ ,  $R_p$ ,  $R_e$ ) dan S untuk sampel hasil karakterisasi XRD dan SRD disebabkan oleh kesalahan teknis dalam mempersiapkan sampel yang akan dikarakterisasi. Beberapa kemungkinan yang menyebabkan perbedaan harga R dan S, yaitu tempat penyimpanan sampel REBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> kurang mendukung (seharusnya disimpan dalam ruang vakum), rentang waktu antara sintesis dan karakterisasi SRD sangat panjang (sekitar 2 tahun), sampel sudah melalui karakterisasi XRD dan HRPD.

#### 4.5. Ortorombisitas

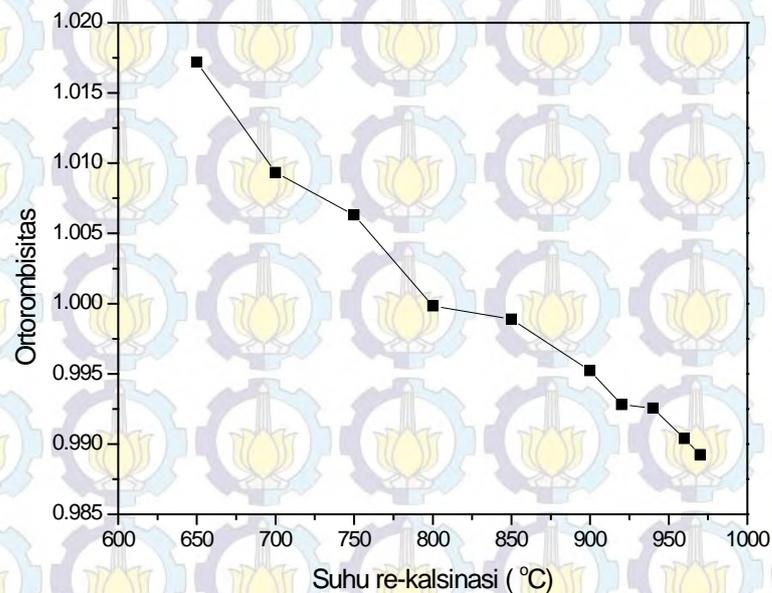
Dari hasil penghalusan pola difraksi juga dapat diperlihatkan bahwa terjadi transisi fasa tetragonal-ortorombik untuk semua sampel dengan suhu re-kalsinasi dari 650 sampai 970°C. Untuk kasus sampel yang diberi perlakuan variasi suhu re-kalsinasi seperti pada sampel Nd-123, Nd<sub>0,5</sub>Gd<sub>0,5</sub>-123 dan Nd<sub>0,33</sub>Eu<sub>0,33</sub>Gd<sub>0,33</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, perhitungan ortorombisitas dilakukan dengan menggunakan rumusan

$$\eta = \left| \frac{a}{b} \right| \quad (4-4)$$

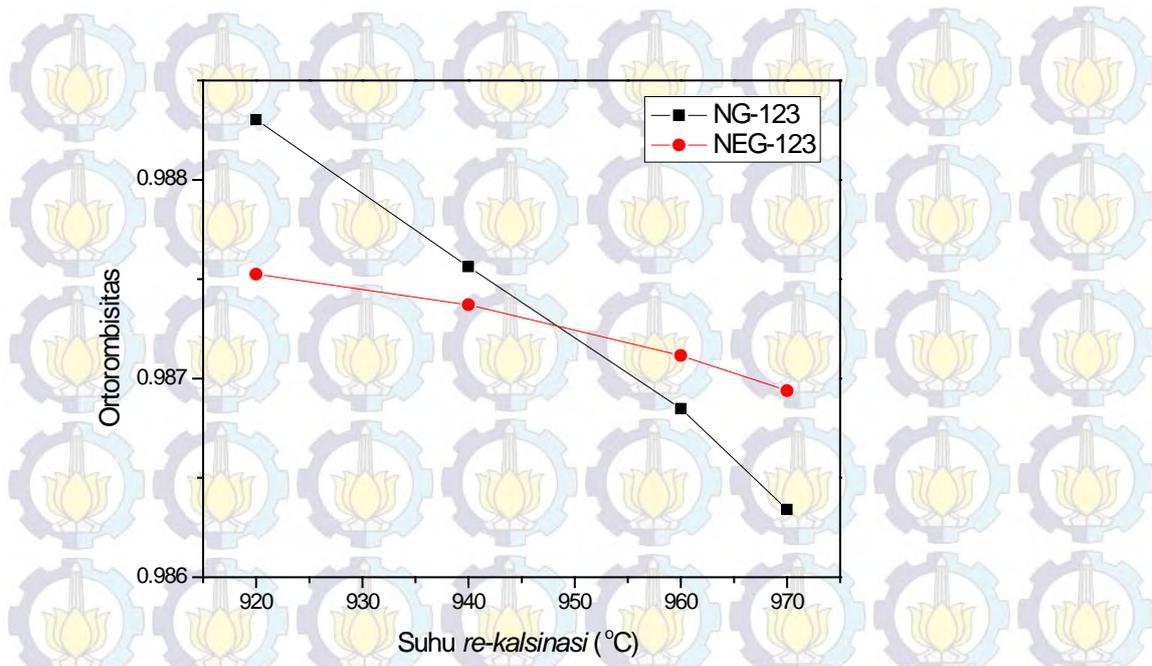
dengan a dan b adalah parameter kisi ke arah sumbu x dan y.

Hasil perhitungan ortorombisitas sampel Nd-123, Nd<sub>0,5</sub>Gd<sub>0,5</sub>-123 dan Nd<sub>0,33</sub>Eu<sub>0,33</sub>Gd<sub>0,33</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> menghasilkan kurva ortorombisitas seperti yang diperlihatkan pada Gambar 4.13 dan 4.14. Hasil perhitungan ortorombisitas memperlihatkan bahwa struktur kristalografi sampel Nd-123 mengalami transisi ortorombik-tetragonal dari suhu 650-970°C. Nilai ortorombisitas berkurang dengan penambahan suhu re-kalsinasi (*thermal strain*). Pada sisi lain, nilai ortorombisitas juga berbeda pada suhu yang sama untuk jenis unsur tanah jarang (*rare-earth elements*) yang berbeda (*doping strain*) dalam sistem-123.

Penurunan ortorombisitas yang cukup tajam dari suhu 650 sampai 970°C kemungkinan disebabkan oleh substitusi oksigen yang berbeda pada masing-masing sampel. Pada suhu tinggi akan terjadi penguapan oksigen, khususnya oksigen O(4) yang mempunyai ikatan paling lemah diantara ikatan oksigen yang lain, sehingga pada suhu tersebut mengakibatkan sampel membentuk struktur tetragonal. Penangkapan oksigen akan terjadi pada suhu rendah pada saat pendinginan sampel dalam *furnace* yang mengakibatkan terjadinya perubahan struktur dari tetragonal ke ortorombik. Jumlah penguapan dan penangkapan oksigen tersebut yang mengakibatkan perbedaan harga ortorombisitas untuk suhu re-kalsinasi yang berbeda. Hasil penelitian yang diperoleh oleh Chung dan Drozd (K.C. Chung 2003; V.A. Drozd 2004) memperlihatkan bahwa besar parameter kisi ke arah sumbu a dan b hampir sama pada suhu tinggi (di atas 680°C) dengan struktur kristal berbentuk tetragonal. Sedangkan pada suhu rendah (400-680°C) besar parameter kisi ke arah sumbu a dan b adalah berbeda dengan struktur kristal berbentuk ortorombik. Perbedaan hasil tersebut disebabkan oleh perbedaan metode pendinginan. Pada penelitian ini pendinginan sampel setelah melalui proses pemanasan dilakukan di dalam *furnace* (dibiarkan mendingin secara alami), sedangkan Chung dan Drozd menggunakan metode *quench*.



Gambar 4.13. Ortorombisitas terhadap penambahan suhu re-kalsinasi dari 650 sampai 970°C untuk sampel Nd-123

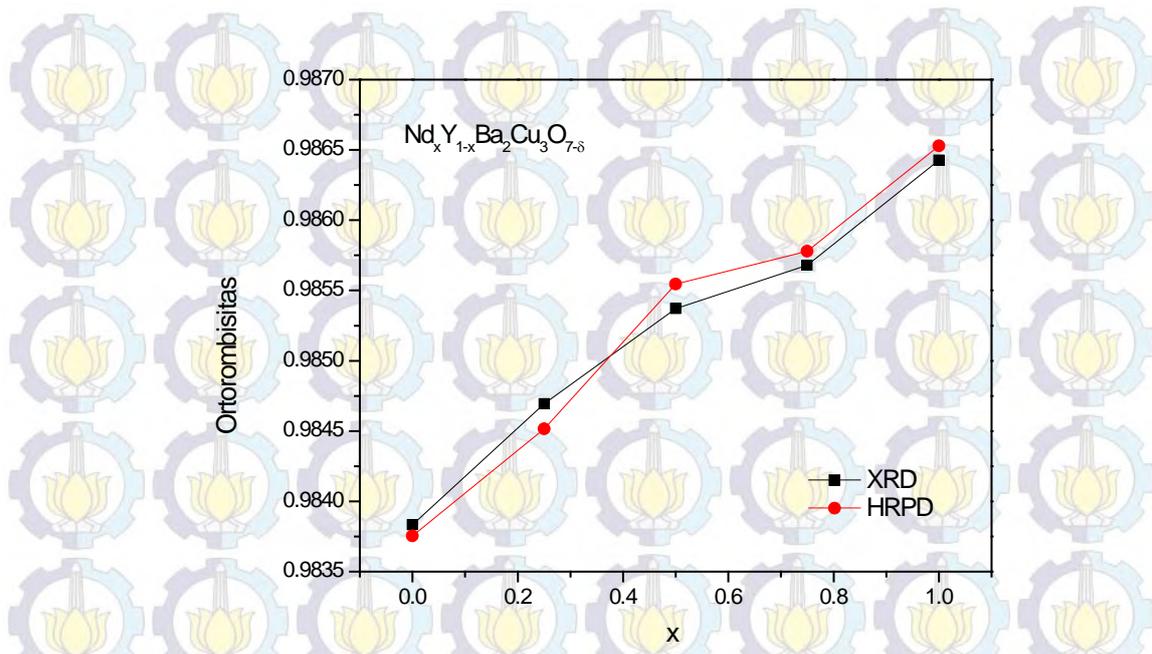


Gambar 4.14. Ortorombisitas sampel  $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{-123}$  dan  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan suhu re-kalsinasi dari 920-970°C

Kurva ortorombisitas untuk sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$  dari hasil refinement XRD yang dihitung dengan menggunakan persamaan (4-4) memperlihatkan pola yang sama dengan hasil refinement HRPD, dimana ortorombisitas bertambah dengan penambahan  $x$  seperti diperlihatkan pada Gambar 4.15. Keberadaan  $\text{Nd}^{3+}$  dalam posisi  $\text{Y}^{3+}$  telah mengakibatkan migrasi oksigen, karena terjadi perubahan dari keadaan kesetimbangan ortorombik ke tetragonal.

Fenomena ortorombisitas pada sampel yang disubstitusi suatu unsur juga telah dilaporkan oleh Yang Li dan kawan-kawan (Y. Li 2004). Yang Li mensintesis superkonduktor  $\text{Eu}_{1+x}\text{Ba}_{2-x}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x = 0-0,2$ ) dengan metode *solid state reaction*, dan kalsinasi pada suhu 800°C selama 24 jam, kemudian dipadatkan pada tekanan  $10^9$  Pa, dan disinter pada 950°C selama 30 jam, kemudian di anil pada 500°C selama 15 jam. Dari hasil penelitian, mereka mendapatkan bahwa struktur kristalografi mengalami transisi fasa dari ortorombik ke tetragonal dengan penambahan  $x$  dari 0 sampai 0,2.

Hasil yang sama diperoleh oleh Masahito Inagaki (M. Inagaki 2006) yang menyatakan bahwa penambahan unsur Nd pada senyawa NdY-123 mengakibatkan transisi fasa dari ortorombik ke tetragonal.



Gambar 4.15. Ortorombisitas sampel superkonduktor  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x = 0 - 1$ )

#### 4.6. Faktor Hunian (*Occupancy*)

Data kristalografi sampel  $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  yang diperoleh dari penghalusan parameter-parameter pola difraksi menggunakan analisis *Rietveld* dari hasil karakterisasi HRPD diperlihatkan pada Tabel 4.3. Berbeda dengan penghalusan parameter-parameter pola difraksi yang dilakukan pada XRD, dimana faktor termal tidak di *refine* karena menghasilkan nilai negatif, sehingga faktor hunian (*occupancy*) juga tidak di *refine*, sedangkan pada difraktogram HRPD, parameter termal untuk semua posisi atom telah di *refine* dengan pendekatan isotropik dan semua faktor hunian dibuat konstan kecuali atom oksigen pada posisi (0, 0,5, 0) atau O(4). Jadi untuk faktor hunian difraktogram HRPD hanya dilakukan penghalusan parameter pola difraksi terhadap oksigen pada posisi O(4). Proses penghalusan pola difraksi faktor hunian agak sulit dilakukan, karena sangat dipengaruhi oleh faktor termal. Penghalusan pola difraksi unsur oksigen pada posisi O(4) dapat mengubah nilai faktor termal menjadi negatif. Nilai negatif pada faktor termal tidak mempunyai arti fisis, sehingga penghalusan pola difraksi harus diulang dengan mengubah nilai faktor termal sampai diperoleh nilai positif.

Substitusi unsur Nd pada sampel  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  juga diprediksi menghasilkan migrasi oksigen, yang berakibat pada cacat kristal yang disebabkan oleh perbedaan jari-jari ion dan faktor termal seperti yang telah dilaporkan oleh Inagaki (M. Inagaki 2006). Cacat kristal tersebut dapat diamati dengan melakukan penghalusan parameter puncak difraksi faktor hunian oksigen pada posisi O(4). Apabila faktor hunian untuk posisi O(4) penuh, maka akan mempunyai harga *occupancy* sebesar 0,125. Sedangkan hasil penghalusan parameter-parameter puncak difraksi pada Tabel 4.3 menunjukkan harga yang lebih kecil yaitu sebesar 0,1226. Hasil tersebut mengindikasikan bahwa ada kekosongan oksigen pada posisi O(4), yang dapat dikatakan sebagai cacat kristal. Akan tetapi dalam teori superkonduktor, justru cacat kristal ini yang dibutuhkan agar suatu bahan dapat berfungsi sebagai bahan superkonduktor.

Tabel 4.3. Data kristalografi hasil karakterisasi HRPD untuk  $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Atom	Posisi Wyckoff	x	y	z	Faktor hunian (g)	Faktor termal (B) ( $\text{\AA}^3$ )
Nd	1h	0,5	0,5	0,5	0,03125	0,1767 (5)
Y	1h	0,5	0,5	0,5	0,09375	0,6
Ba	2t	0,5	0,5	0,18204 (4)	0,25	0,1121 (8)
Cu (1)	1a	0	0	0	0,125	0,6429 (7)
Cu (2)	2q	0	0	0,35157 (3)	0,25	0,6174 (1)
O (1)	2q	0	0	0,16139 (5)	0,25	1,1035 (1)
O (2)	2r	0	0,5	0,37329 (8)	0,25	0,0545 (1)
O (3)	2s	0,5	0	0,27932 (4)	0,25	0,4234 (2)
O (4)	1e	0,5	0	0	0,1226 (8)	0,7527 (6)

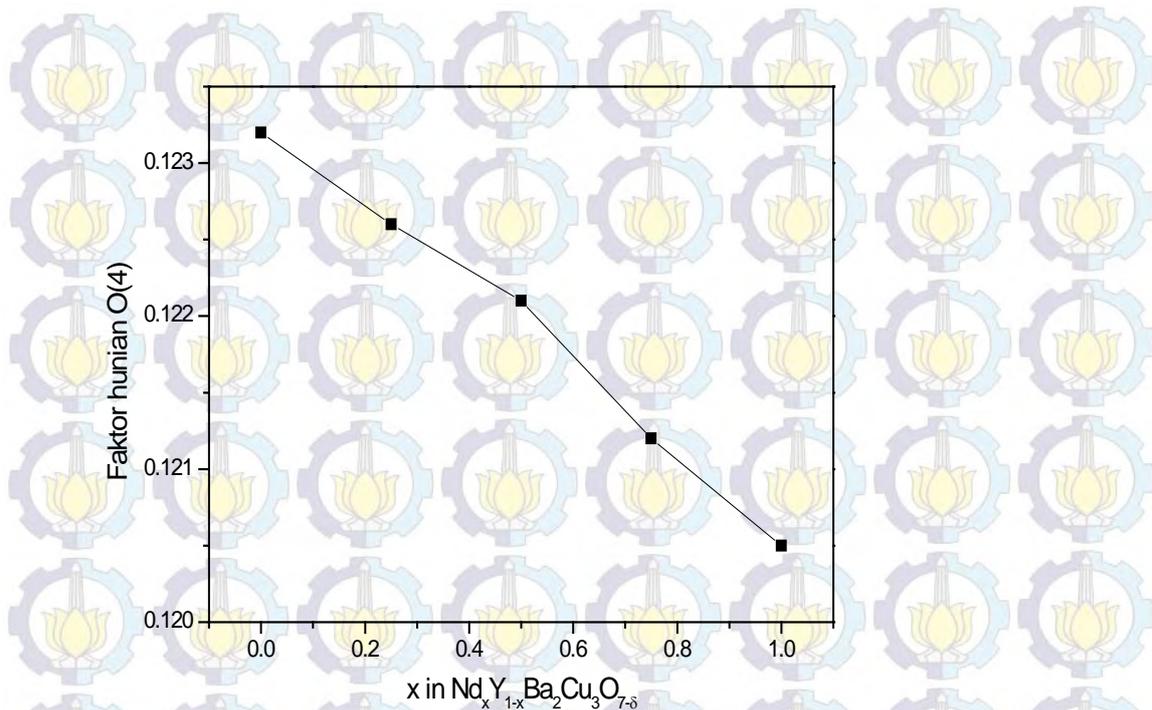
Harga faktor hunian untuk semua sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dari hasil penghalusan pola difraksi dengan analisis *Rietveld* menggunakan program *FullProf* (C.J. Rodriguez 2001) diperlihatkan pada Tabel 4.4. Sedangkan pola perubahan faktor hunian oksigen O(4) dengan penambahan unsur Nd dalam sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  diperlihatkan pada Gambar 4.16.

Seperti yang telah dijelaskan pada sub bab sebelumnya, bahwa bahan bersifat sebagai superkonduktor apabila bahan tersebut mempunyai kandungan oksigen antara

6,5 dan 7. Jadi dalam sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  harga  $\delta$  harus berada dalam kisaran nilai  $0 < \delta < 0,5$ . Dengan penambahan jumlah Nd pada sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , harga faktor hunian dari oksigen O(4) berkurang (Tabel 4.4 dan Gambar 4.16). Hal tersebut mengindikasikan bahwa dengan penambahan unsur Nd, maka semakin besar kemungkinan oksigen terlepas dari ikatan dengan atom-atom yang berada pada tetangga terdekat, khususnya oksigen O(4).

Tabel 4.4. Harga faktor hunian (*occupancy*) hasil karakterisasi HRPD untuk sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  setelah penghalusan pola difraksi dengan analisis *Rietveld* menggunakan program *FullProf* (C.J. Rodriguez 2001)

Atom	Faktor hunian ( <i>occupancy</i> ) O(4)				
	Y-123	$\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}$ -123	$\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}$ -123	$\text{Nd}_{0,75}\text{Y}_{0,25}$ -123	Nd-123
Nd	-	0,03125	0,0625	0,09375	0,125
Y	0,125	0,09375	0,0625	0,03125	-
Ba	0,25	0,25	0,25	0,25	0,25
Cu(1)	0,125	0,125	0,125	0,125	0,125
Cu(2)	0,25	0,25	0,25	0,25	0,25
O(1)	0,25	0,25	0,25	0,25	0,25
O(2)	0,25	0,25	0,25	0,25	0,25
O(3)	0,25	0,25	0,25	0,25	0,25
O(4)	0,1232 (5)	0,1226 (8)	0,1221 (5)	0,1212 (7)	0,1205 (4)

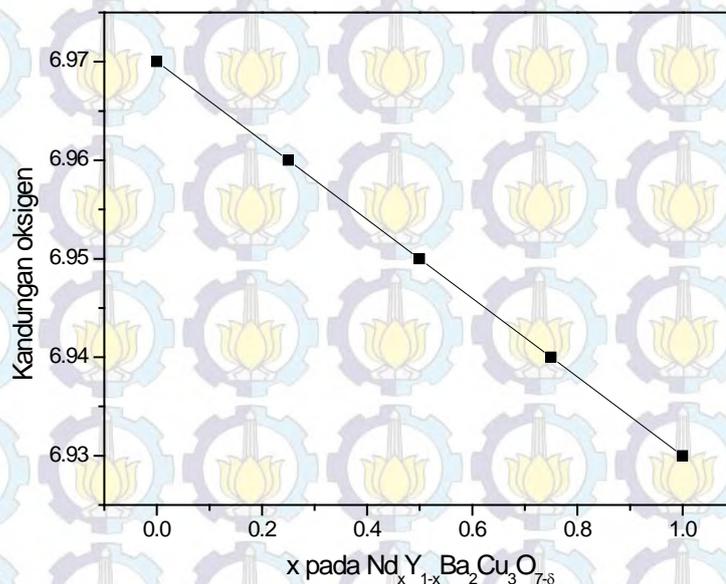


Gambar 4.16. Faktor hunian (*Occupancy*) oksigen pada posisi O (4) dengan penambahan  $x$  dalam sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  setelah penghalusan pola difraksi menggunakan analisis *Rietveld* untuk data HRPD

Ada beberapa cara yang digunakan untuk menentukan kandungan oksigen suatu senyawa, diantaranya adalah dengan *iodine titration* dan TGA. Dalam eksperimen ini penentuan kandungan oksigen tidak dilakukan dengan *iodine titration* dan TGA, akan tetapi dengan menghitung faktor hunian masing-masing posisi oksigen. Pada eksperimen ini dilakukan pendekatan, dimana faktor hunian untuk O(1), O(2) dan O(3) dianggap terisi penuh, yang menggambarkan bahwa tidak ada oksigen yang mengalami migrasi pada posisi O(1), O(2) dan O(3). Oleh karena itu total kandungan oksigen yang terdapat dalam ketiga posisi oksigen tersebut berjumlah 6. Sedangkan faktor hunian yang di *refine* adalah faktor hunian pada posisi oksigen O(4). Dari hasil penghalusan parameter-parameter pola difraksi pada Tabel 4.4 di atas, kemudian dilakukan perbandingan antara faktor hunian penuh ( $\delta=0$ ) dengan hasil penghalusan parameter-parameter pola difraksi. Untuk kasus faktor hunian penuh, maka jumlah oksigen adalah 7 dengan struktur tetragonal. Satu contoh perhitungan untuk sampel  $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , dimana diperoleh harga faktor hunian dari hasil *refinement* sebesar 0,1226, sedangkan faktor hunian penuh yang harus dimiliki oleh oksigen pada

posisi O(4) adalah 0,125. Hasil perbandingan faktor hunian hasil *refinement* dengan faktor hunian penuh adalah 0,9616. Sebelumnya telah dihitung jumlah kandungan oksigen pada posisi O(1), O(2) dan O(3) yaitu berjumlah 6 atom, sehingga jumlah kandungan oksigen keseluruhan untuk sampel  $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  adalah 6,9616. Kurva perubahan kandungan oksigen untuk semua sampel diperlihatkan pada Gambar 4.17, sedangkan komposisi kimia masing-masing senyawa diperlihatkan pada Tabel 4.5. Dari gambar tersebut terlihat bahwa semakin besar penambahan unsur Nd, kandungan oksigen pada senyawa tersebut semakin kecil.

Berdasarkan hasil sintesis, karakterisasi dan analisis *Rietveld* untuk sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{(1-x)}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , dapat dikatakan bahwa sintesis dengan menggunakan *dissolved method* telah berhasil membuat kristal  $\text{Nd}_x\text{Y}_{(1-x)}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan fraksi berat yang tinggi sekitar 97 % pada suhu re-kalsinasi  $970^\circ\text{C}$ . Penambahan unsur Nd dari 0 sampai 1 pada superkonduktor  $\text{Nd}_x\text{Y}_{(1-x)}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  mengakibatkan kenaikan harga parameter kisi, menurunkan harga ortorombisitas dan menurunkan harga faktor hunian pada posisi O(4) sehingga menurunkan jumlah kandungan oksigen. Inilah fakta yang menunjukkan adanya distorsi kristal pada bahan  $\text{Nd}_x\text{Y}_{(1-x)}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .



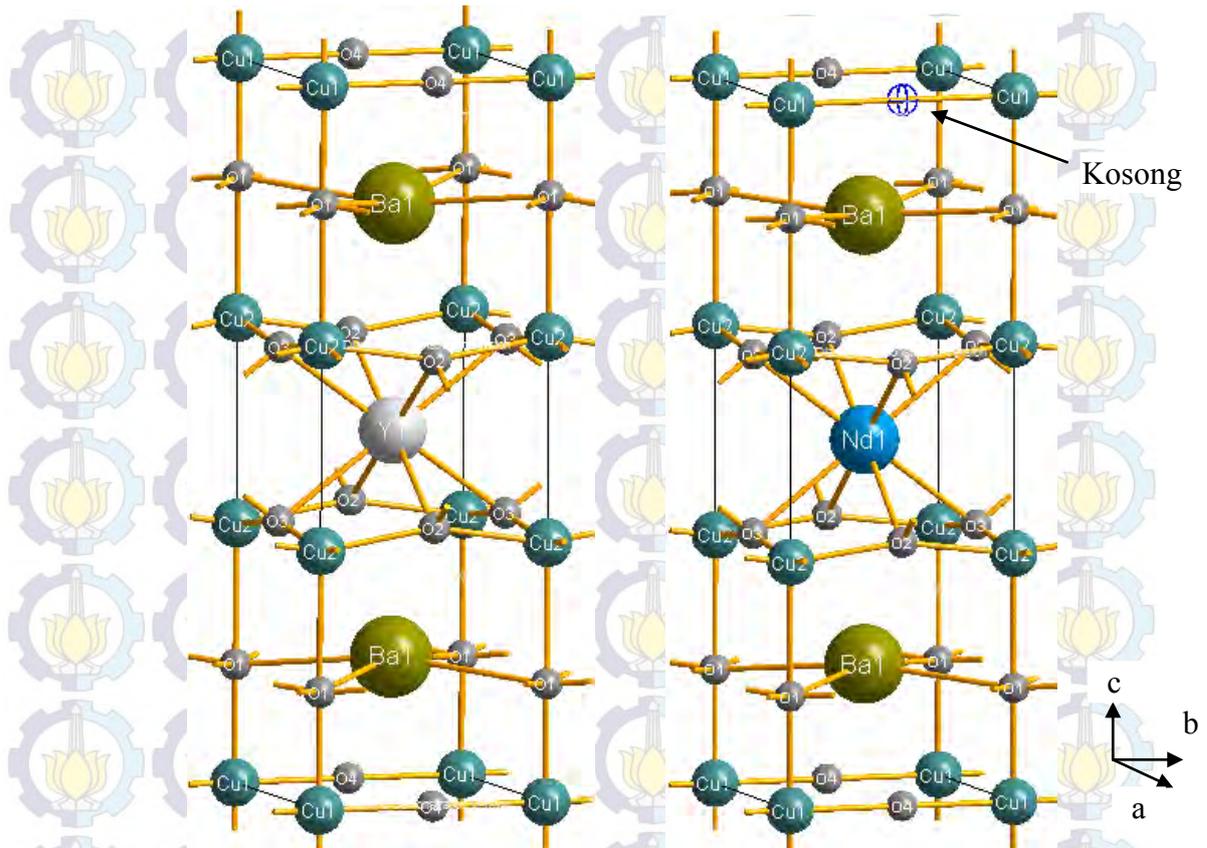
Gambar 4.17. Kurva kandungan oksigen terhadap penambahan x dalam sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Table 4.5. Kandungan oksigen sampel superkonduktor  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Sampel	Kandungan Oksigen
$\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ( $x = 0$ )	$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,97}$
$\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ( $x = 0,25$ )	$\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,96}$
$\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ( $x = 0,5$ )	$\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,95}$
$\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ( $x = 0,75$ )	$\text{Nd}_{0,75}\text{Y}_{0,25}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,94}$
$\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ( $x = 1$ )	$\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,93}$

#### 4.7. Distorsi Struktur Kristal

Substitusi unsur Nd pada superkonduktor Y-123 telah menghasilkan distorsi struktur kristal dilihat dari perubahan parameter kisi ( $a$ ,  $b$ ,  $c$ ), pergeseran sudut  $2\theta$  dan faktor hunian (*occupancy*) oksigen pada posisi O4. Dari hasil refinement XRD, HRPD dan SRD, telah diperoleh harga parameter kisi semakin naik dengan penambahan unsur Nd, sejalan dengan pergeseran sudut  $2\theta$  menuju sudut yang lebih kecil, dan penurunan harga *occupancy* oksigen pada posisi O4. Hasil refinement tersebut digunakan untuk menggambarkan struktur kristal sampel dengan menggunakan program *Diamond* (H. Putz 2012). Struktur kristal untuk sampel  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $a = 3,8213 \text{ \AA}$ ,  $b = 3,8849 \text{ \AA}$ ,  $c = 11,6833 \text{ \AA}$ ) dan  $\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $a = 3,8453 \text{ \AA}$ ,  $b = 3,9010 \text{ \AA}$ ,  $c = 11,7147 \text{ \AA}$ ) masing-masing diperlihatkan pada Gambar 4.18. Seperti telah dijelaskan pada sub bab 4.6 (Tabel 4.16), bahwa penambahan unsur Nd mengakibatkan penurunan harga faktor hunian (*occupancy*) oksigen pada posisi O4, yang mengindikasikan bahwa jumlah oksigen yang kosong pada posisi O4 semakin banyak.



Gambar 4.18. Struktur kristal sampel  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan  $\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Tabel 4.6 memperlihatkan perubahan jarak antar atom masing-masing sampel akibat penambahan unsur Nd. Hasil perhitungan pada Tabel 4.6 sesuai dengan hasil *refinement* pada Tabel 4.2 yang mengimplikasikan bahwa peningkatan jarak antar atom terjadi ke semua arah. Peningkatan jarak antar atom sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x=0, 0,25, 0,5, 0,75, 1$ ) ke arah sumbu c terlihat pada atom Y/Nd-Ba dari  $x = 0$  (3,6536 Å) sampai  $x = 1$  (3,7478 Å). Sedangkan peningkatan jarak antar atom ke arah sudut tertentu terlihat pada atom Y/Nd-O2, atom Y/Nd-O3, atom Y/Nd-Cu2, atom Ba-O1, atom Cu2-O2, atom Cu2-O3 dan atom Cu1-O4. Hasil tersebut mengimplikasikan bahwa penambahan unsur Nd mengakibatkan regangan (*strain*) pada lapisan  $\text{CuO}_2$ , BaO dan  $\text{CuO}_x$ . Hasil tersebut sesuai dengan hasil yang diperoleh oleh Zhao dan Zhang (Y. Zhao 1990; Q.R. Zhang 1993), yang telah membuktikan bahwa semakin besar ion  $\text{RE}^{3+}$  maka akan memperpanjang ikatan Cu-O dalam arah a dan b.

Tabel 4.6. Harga jarak antar atom sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x=0, 0,25, 0,5, 0,75, 1$ )

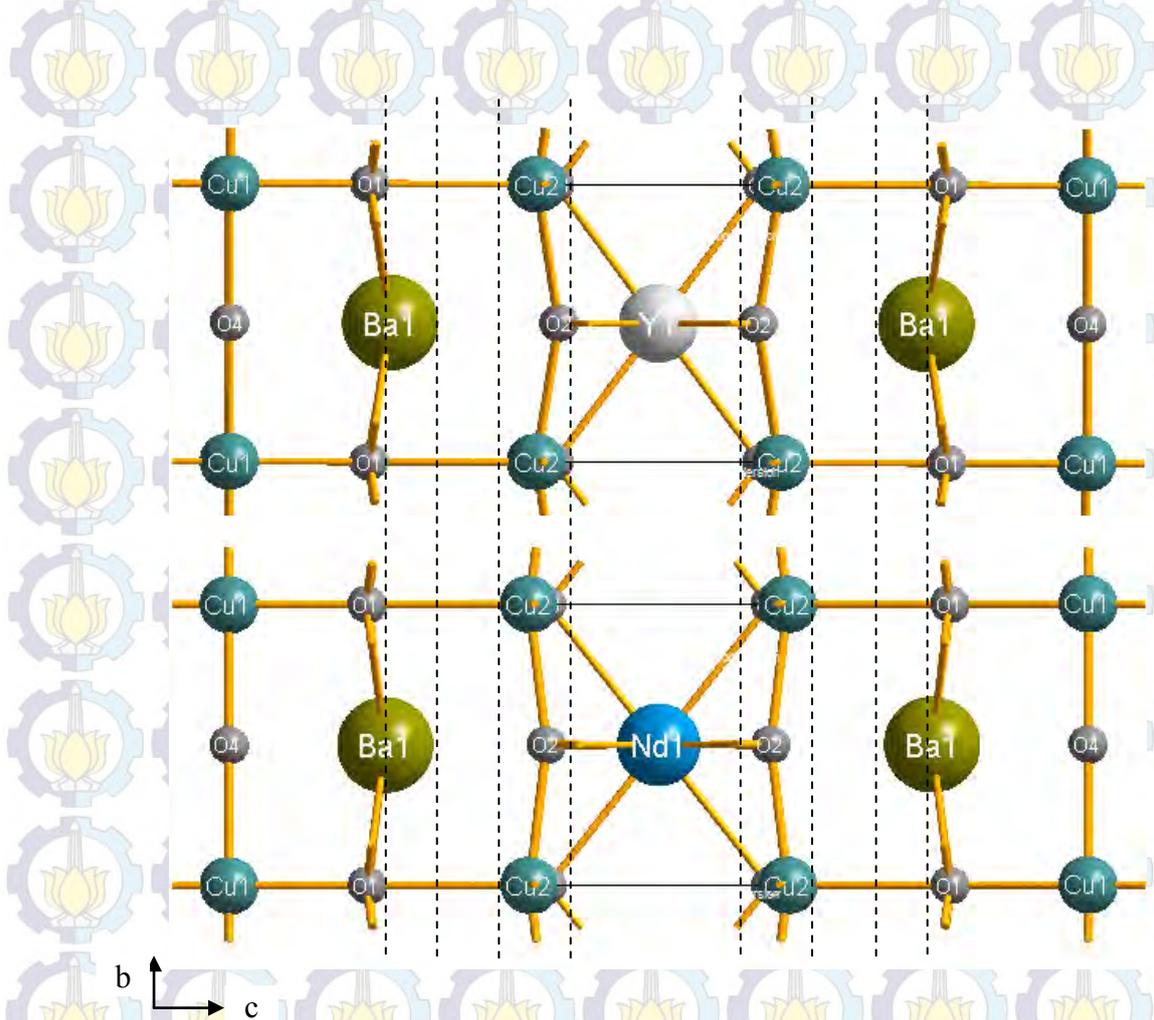
Atom	Jarak antar atom (Å)				
	sampel $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$				
	$x = 0$	$x = 0,25$	$x = 0,5$	$x = 0,75$	$x = 1$
Y/Nd-Ba	3,654	3,660	3,725	3,734	3,748
Y/Nd-O2	2,368	2,398	2,451	2,483	2,501
Y/Nd-O3	2,370	2,386	2,429	2,450	2,489
Y/Nd-Cu2	3,190	3,198	3,237	3,261	3,283
Ba-O1	2,739	2,748	2,749	2,756	2,764
Cu2-O2	1,935	1,939	1,941	1,943	1,947
Cu2-O3	1,959	1,967	1,970	1,975	1,983
Cu1-O4	1,911	1,916	1,923	1,934	1,947

Tabel 4.7. Harga sudut antar atom sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x=0, 0,25, 0,5, 0,75, 1$ )

Atom	Sudut (derajat)				
	sampel $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$				
	$x = 0$	$x = 0,25$	$x = 0,5$	$x = 0,75$	$x = 1$
O4- Ba-O4	83,5373	83,8242	84,0866	84,2469	84,3928
Cu1-Ba-Cu1	66,3333	66,3586	67,2818	67,3733	67,4756
Cu2-Nd-Cu2	64,3924	64,4151	64,4674	65,3953	66,1680
O2-Nd-O2	74,1218	74,6272	75,3351	76,1944	77,0037
O3-Nd-O3	73,2469	74,5882	75,5575	76,2266	77,3461

Regangan pada lapisan  $\text{CuO}_2$ ,  $\text{BaO}$  dan  $\text{CuO}_x$  mengakibatkan terjadinya perubahan sudut antar atom, seperti terlihat pada Tabel 4.7. Dari tabel terlihat bahwa sudut atom-atom O4-Ba-O4, Cu1-Ba-Cu1, Cu2-Nd-Cu2, O2-Nd-O2 dan O3-Nd-O3 naik dengan penambahan unsur Nd, yang mengimplikasikan terjadi pembesaran

struktur kristal ke segala arah, sehingga posisi masing-masing atom berubah. Perubahan posisi atau pergeseran atom-atom dari sampel  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  menjadi sampel  $\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  diperlihatkan pada Gambar 4.19.



Gambar 4.19. Pergeseran atom-atom dari sampel  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  menjadi sampel  $\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

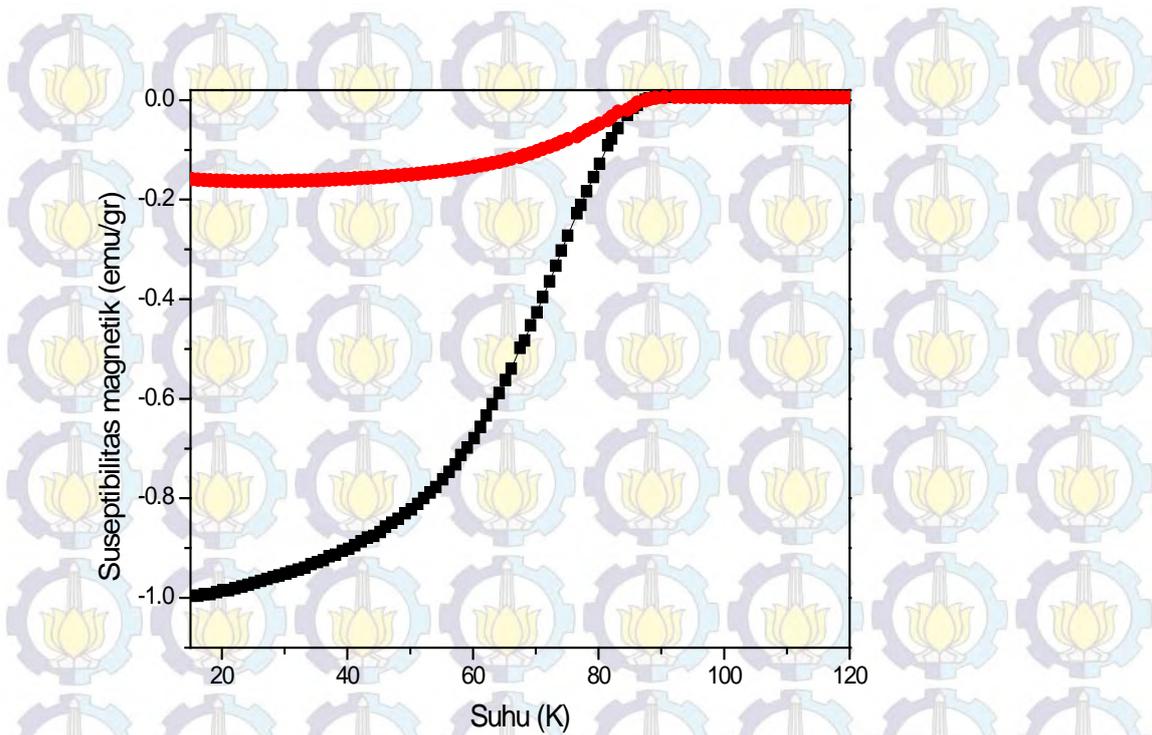
## BAB 5

# SIFAT LISTRIK DAN MAGNETIK

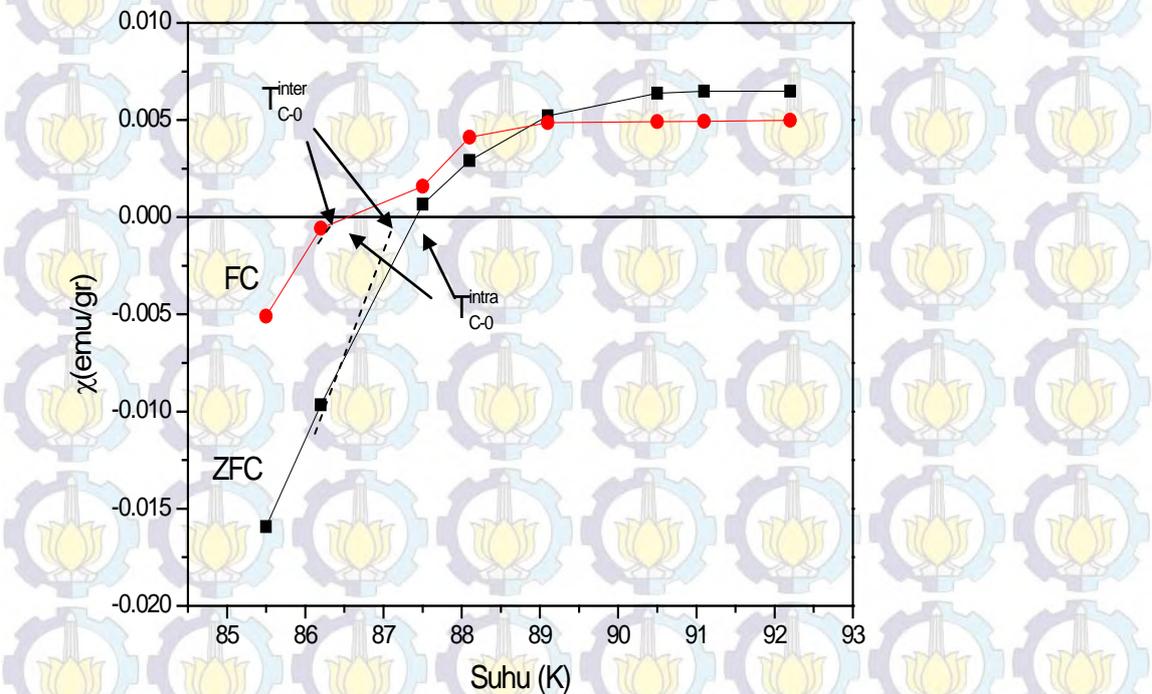
### 5.1. Transisi Superkonduktif dan Rapat Arus Kritis

Pengamatan superkonduktivitas dalam medan magnet, dilakukan dengan pengukuran magnetisasi ( $M$ ) sebagai fungsi suhu ( $T$ ) melalui dua tahapan yaitu pendinginan tanpa medan magnet (*zero field cooling* atau ZFC) dan pendinginan dalam medan magnet (*field cooling* atau FC) dengan menggunakan SQUID. Proses ZFC merupakan proses pendinginan dari suhu ruang menuju suhu di bawah suhu kritis ( $T < T_c$ ) tanpa medan. Medan magnet konstan diberikan pada saat suhu dinaikkan menuju suhu di atas suhu kritis. Kurva ZFC menggambarkan sifat *flux shielding* superkonduktor, sedangkan proses FC menggambarkan pengaruh Meissner (*flux expulsion*).

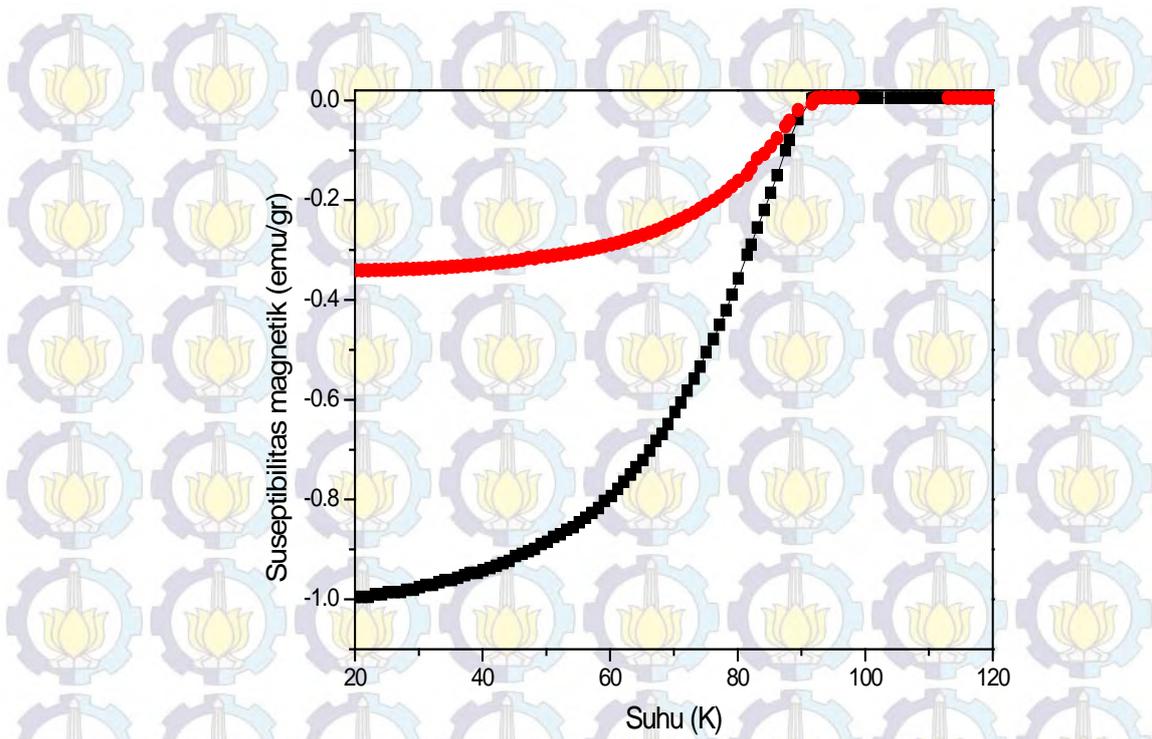
Data suseptibilitas magnetik ( $\chi$ ) atau magnetisasi ( $M$ ) terhadap suhu ( $T$ ) telah diukur dalam FC dan ZFC dalam medan magnetik 10 O e. Hasil pengukuran suseptibilitas magnetik terhadap suhu untuk sampel superkonduktor  $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}$ -123) dan  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  diperlihatkan pada Gambar 5.1 dan 5.3. Kalau kurva diperbesar pada daerah suseptibilitas magnetik sekitar nol emu/gr, maka terdapat perbedaan pola penurunan suseptibilitas untuk FC dan ZFC. Suhu peralihan dari keadaan superkonduktor ke keadaan normal memperlihatkan adanya dua keadaan suhu kritis atau dua harga transisi yaitu superkonduktivitas antar butir (*intergrain superconductivity*) ( $T_{c-0}^{\text{inter}}$ ) dan superkonduktivitas dalam butiran (*intragrain superconductivity*) ( $T_{c-0}^{\text{intra}}$ ) (W. M. Woch 2008) seperti terlihat pada Gambar 5.2 dan 5.4. Harga suhu kritis antar butir  $T_{c-0}^{\text{inter}}$  dan dalam butir  $T_{c-0}^{\text{intra}}$  untuk FC dan ZFC dari sampel  $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  diperlihatkan pada Tabel 5.1. Superkonduktivitas antar butir dikontrol oleh kemampuan arus mengalir dari satu butir ke butir yang lain, sedangkan superkonduktivitas dalam butiran dikontrol oleh *flux pinning* (D. D. Hughes 2001).



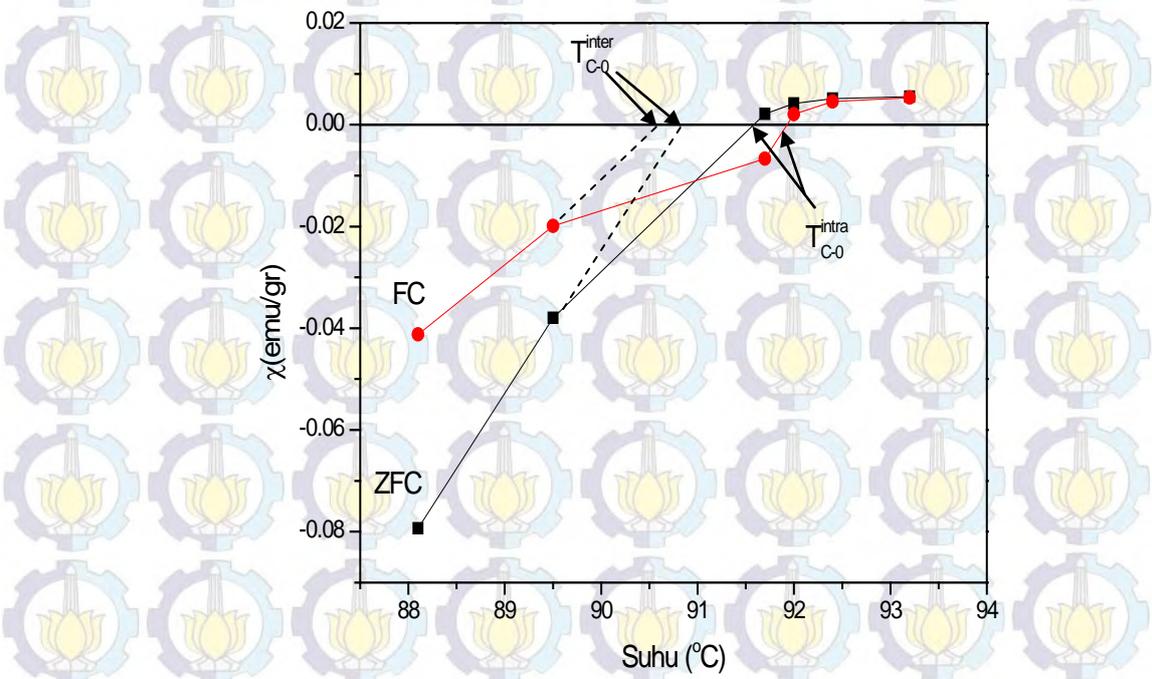
Gambar 5.1. Kurva suseptibilitas terhadap suhu sampel superkonduktor  $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{-123}$



Gambar 5.2. Kurva suseptibilitas terhadap suhu antara 85-95 K untuk sampel  $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{-123}$



Gambar 5.3. Kurva suseptibilitas terhadap suhu sampel superkonduktor  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$



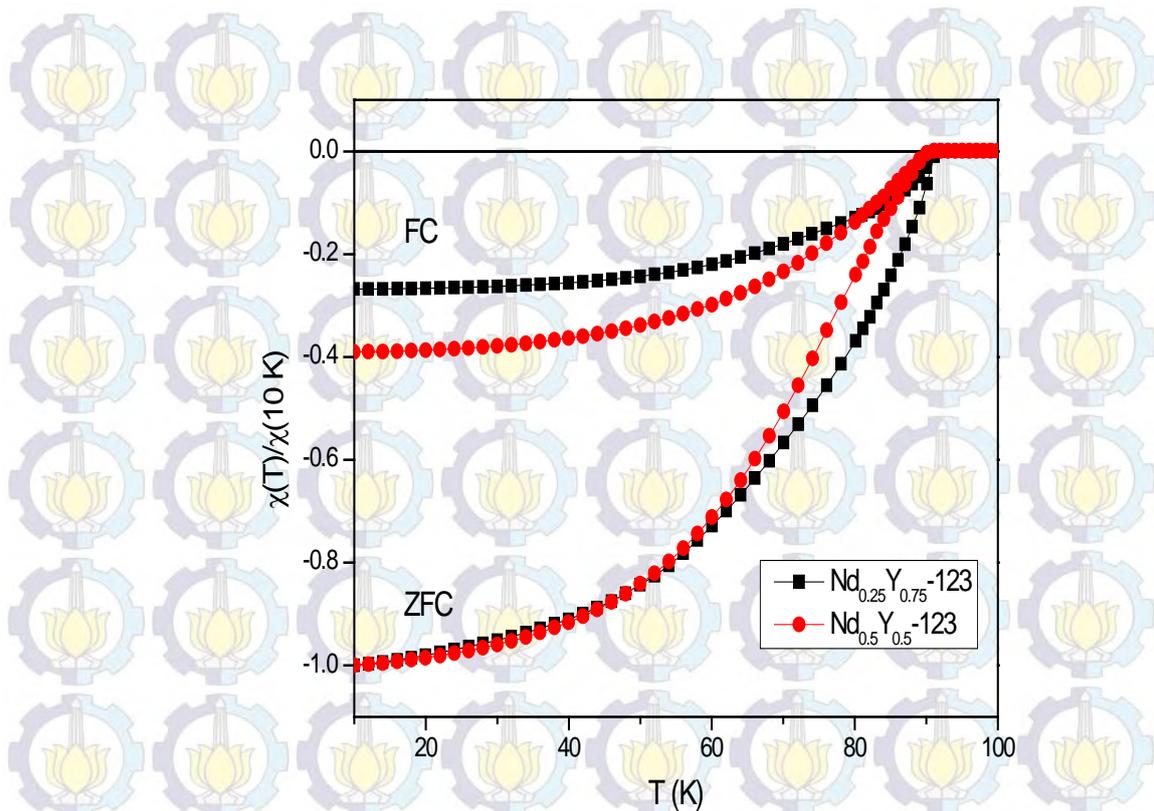
Gambar 5.4. Kurva suseptibilitas terhadap suhu antara 85-95 K untuk sampel  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Tabel 5.1. Harga suhu kritis *intergrain and intragrain superconductivity* untuk FC dan ZFC dari sampel  $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Sampel	FC		ZFC	
	$T_{c-0}^{inter}$ (K)	$T_{c-0}^{intra}$ (K)	$T_{c-0}^{inter}$ (K)	$T_{c-0}^{intra}$ (K)
$\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	86,25	86,50	87,20	87,50
$\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	90,8	92	90,7	91,7

### 5.1.1. Superkonduktor $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$

Data suseptibilitas magnetik ( $\chi$ ) atau magnetisasi (M) terhadap suhu (T) dari sampel superkonduktor  $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan  $\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  telah diukur dalam ZFC dan FC dalam medan magnetik 10 Oe memperlihatkan transisi suhu kritis superkonduktor seperti diperlihatkan pada Gambar 5.5. Untuk dapat melihat perbedaan sifat magnetik masing-masing bahan, maka dibuat kurva ternormalisasi. Susceptibilitas relatif ( $\chi(T)/\chi(10\text{K})$ ) memperlihatkan perbedaan yang signifikan dari kurva ZFC dan FC. Hal tersebut memperlihatkan bahwa ketahanan sifat superkonduktor dalam medan magnetik yang diberikan pada sampel  $\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  lebih besar dibandingkan sampel  $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . Harga suhu kritis antar butir ( $T_{c-0}^{inter}$ ) dan dalam butir ( $T_{c-0}^{intra}$ ) untuk FC dan ZFC, diperlihatkan pada Tabel 5.2. Dari tabel dapat dilihat bahwa harga  $T_{c-0}^{inter}$  dan  $T_{c-0}^{intra}$  untuk FC lebih besar dibandingkan ZFC. Hasil tersebut sama dengan hasil yang diperoleh pada sampel  $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  pada sub bab sebelumnya.



Gambar 5.5. Kurva suseptibilitas terhadap suhu sampel superkonduktor  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$  ( $x = 0,25, 0,5$ )

Tabel 5.2. Harga suhu kritis *intergrain and intragrain superconductivity* untuk FC dan ZFC dari sampel  $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan  $\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Sampel	FC		ZFC	
	$T_{c-0}^{inter}$ (K)	$T_{c-0}^{intra}$ (K)	$T_{c-0}^{inter}$ (K)	$T_{c-0}^{intra}$ (K)
$\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	90,5	91	90,2	90,5
$\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	91,5	92	91,25	91,5

Dari Tabel 5.2 terlihat bahwa semakin besar jumlah substitusi unsur Nd pada superkonduktor  $\text{Nd}_x\text{Y}_{(1-x)}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  maka suhu kritis yang dihasilkan juga semakin tinggi. Suhu kritis untuk  $x=0,25$  adalah 91 K, sedangkan untuk  $x=0,5$  adalah 92 K.

Hasil karakterisasi SQUID untuk kurva magnetisasi terhadap medan (M-H) atau kurva histeresis yang diukur pada 5 K diperlihatkan pada Gambar 5.6. Daerah medan tersebut merupakan daerah medan *irreversible* ( $M_{irr}$ ) dan karena medan yang diberikan turun dan naik mengakibatkan magnetisasi yang dihasilkan berbeda. Rapat arus kritis ( $J_c$ ) adalah sebanding dengan perbedaan magnetisasi ( $\Delta M$ ), yang diukur pada saat penambahan dan pengurangan medan magnetik.

Besaran fraksi volume superkonduktor (*superconducting volume fraction*) dihitung dari data kurva suseptibilitas M-T, baik pada FC maupun ZFC. Dengan pengetahuan kerapatan sampel  $Nd_{0,5}Y_{0,5}Ba_2Cu_3O_{7-8}$  ( $\rho$ ) sekitar  $6,964 \text{ gr/cm}^3$  dan berat sampel yang diukur dengan menggunakan SQUID adalah  $0,152 \text{ gr}$ , maka dapat dihitung volumenya adalah  $0,021823 \text{ cm}^3$ . Dengan menggunakan harga momen magnetik (ZFC) pada suhu 5 K, maka suseptibilitas dapat dihitung sebagai berikut :

$$\chi_v = -\frac{m}{H_o \left( \frac{1}{1-n_m} \right) V} = -\frac{0,09122}{10 \left( \frac{1}{1-1/3} \right) 0,021823} = 0,0278666$$

Harga  $n = 1/3$  adalah faktor demagnetisasi dengan asumsi partikel berbentuk bola (*spherical*). Perhitungan menghasilkan  $\chi_o = -0,0278666 \text{ emu/cm}^3$ , kemudian harga tersebut dibandingkan dengan harga diamagnetik sempurna  $\chi_{dia} = -1/4\pi$  untuk mendapatkan *superconducting volume fraction* ( $FV_s$ ) (A. Ehmman 1993; T. Rentschler 1994; I. S. Suzuki 2001).

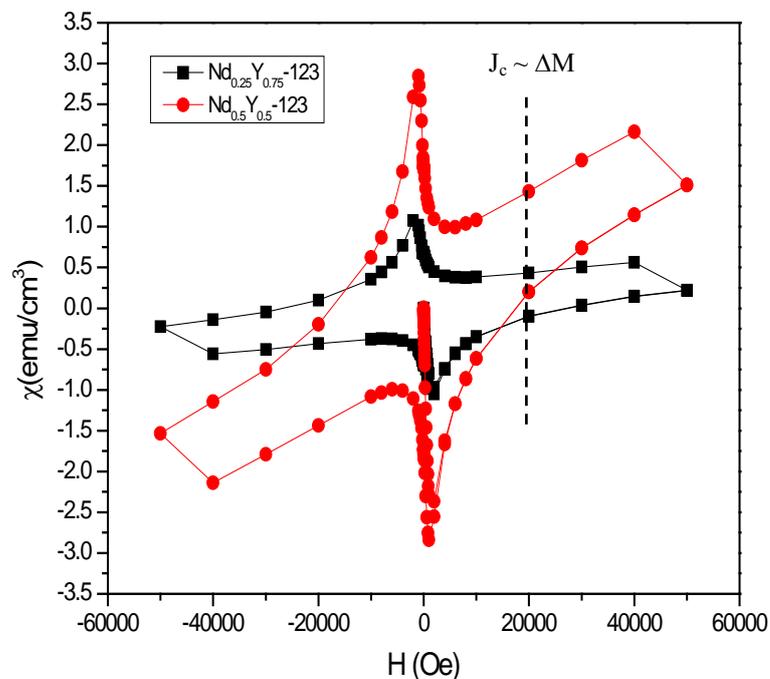
$$FV_s = \frac{\chi_o}{\chi_{dia}} = \frac{-0,0278666}{-1/4\pi} = 0,35 = 35\%$$

Jadi fraksi volume superkonduktor pada 5 K adalah 35 % untuk sampel  $Nd_{0,5}Y_{0,5}Ba_2Cu_3O_{7-8}$  dan telah dihitung pula untuk sampel  $Nd_{0,25}Y_{0,75}Ba_2Cu_3O_{7-8}$  sebesar 26 %. Harga-harga tersebut menggambarkan kemampuan bahan menahan fluks magnetik relatif dari keadaan diamagnetik sempurna (Meissner).

Dari Gambar 5.6 terlihat bahwa perbedaan magnetisasi sampel  $Nd_{0,5}Y_{0,5}Ba_2Cu_3O_{7-8}$  lebih besar dibandingkan sampel  $Nd_{0,25}Y_{0,75}Ba_2Cu_3O_{7-8}$ . Rapat arus kritis ( $J_c$ ) bergantung pada porositas, ukuran butiran, dan keberadaan fasa kedua dalam daerah *grain boundary* seperti yang dilaporkan oleh Suasmoro, dan kawan-kawan (S. Suasmoro 2012). Hal tersebut tercermin dalam rumusan yang dikenal dengan model Bean's (S. Elschner 1992) :

$$J_c = \frac{3\Delta m}{2rV} = \frac{3 \times 7,03 \times 10^{-2}}{2 \times 0,5 \times 10^{-6} \times 0,021823} = 1 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$$

Perhitungan rapat arus kritis di atas adalah untuk sampel berbentuk serbuk, diasumsikan terjadi aglomerasi partikel berbentuk bola (*spherical*). Dari hasil perhitungan diperoleh harga rapat arus kritis pada suhu 5 K yaitu  $4 \times 10^4 \text{ Acm}^{-2}$  untuk sampel  $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan  $1 \times 10^5 \text{ Acm}^{-2}$  untuk sampel  $\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . Harga  $J_c$  sampel  $\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  lebih besar dibandingkan harga  $J_c$  sampel  $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , yang mengindikasikan bahwa penambahan Nd dalam sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dapat meningkatkan suhu kritis, sifat ketahanan superkonduktor terhadap medan magnet dan rapat arus kritis.

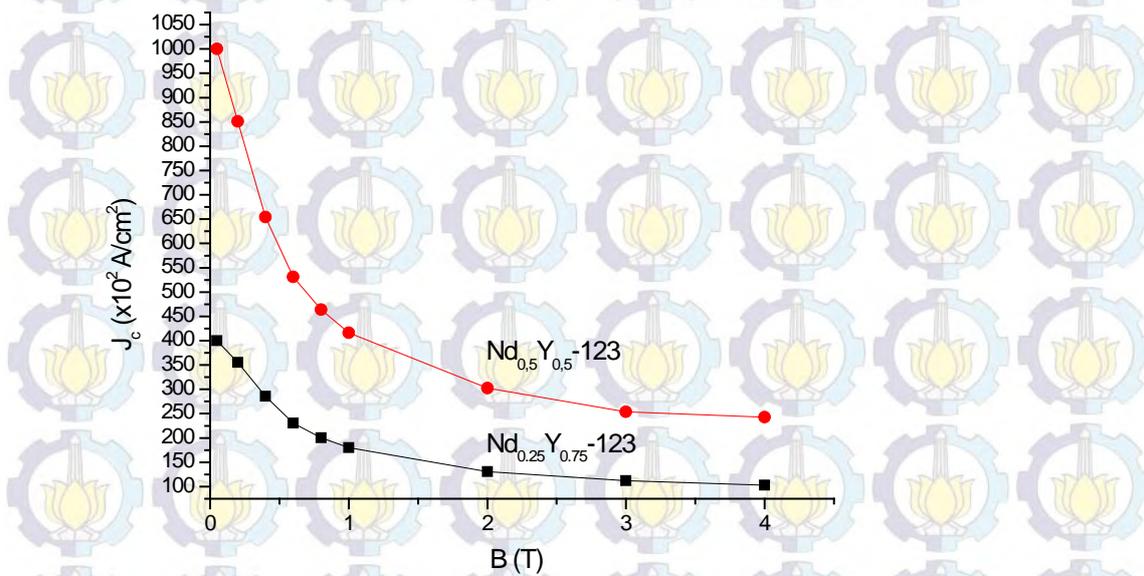


Gambar 5.6. Kurva suseptibilitas terhadap medan magnetik sampel superkonduktor  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$  ( $x = 0,25, 0,5$ )

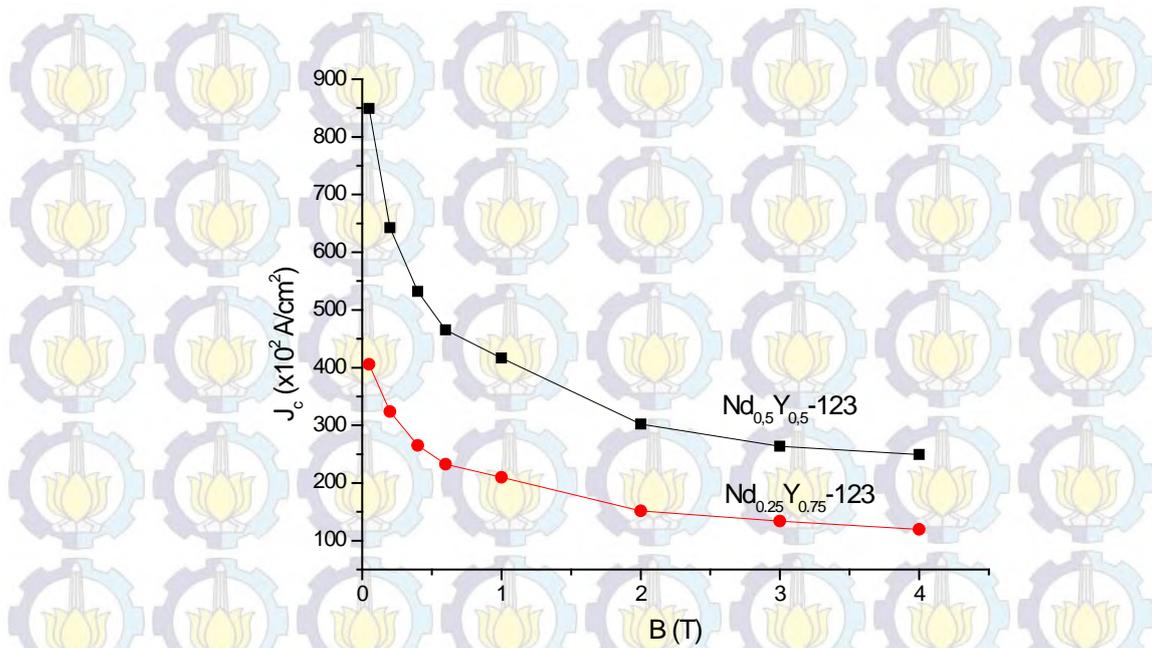
Pola penurunan rapat arus kritis dengan penambahan kuat medan magnetik luar diperlihatkan pada Gambar 5.7 dan 5.8. Kurva pada Gambar 5.7 merupakan hasil perhitungan rapat arus kritis ( $J_c$ ) pada daerah medan positif untuk sampel  $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dan  $\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , sedangkan kurva pada Gambar 5.8

adalah hasil perhitungan rapat arus kritis pada daerah medan negatif untuk sampel  $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{-123}$  dan  $\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}\text{-123}$ . Secara umum terlihat bahwa harga rapat arus kritis sampel  $\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}\text{-123}$  lebih besar dibandingkan sampel  $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{-123}$  untuk semua harga kuat medan magnetik luar yang diaplikasikan.

Kedua sampel memperlihatkan kesamaan pola perubahan rapat arus kritis terhadap kuat medan magnetik luar. Rapat arus kritis tertinggi diperoleh pada kuat medan magnetik luar sekitar 2000 Oe dan penambahan kuat medan magnetik luar mengakibatkan harga rapat arus kritis menurun. Hasil yang sama mengenai pola penurunan rapat arus kritis terhadap kuat medan magnetik luar diperlihatkan oleh S. Nariki dan kawan-kawan (S. Nariki 2006), dimana penurunannya terjadi secara eksponensial.



Gambar 5.7. Kurva rapat arus kritis ( $J_c$ ) terhadap kuat medan magnetik ( $H$ ) untuk sampel superkonduktor  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{-123}$  ( $x = 0,25, 0,5$ ) pada medan positif



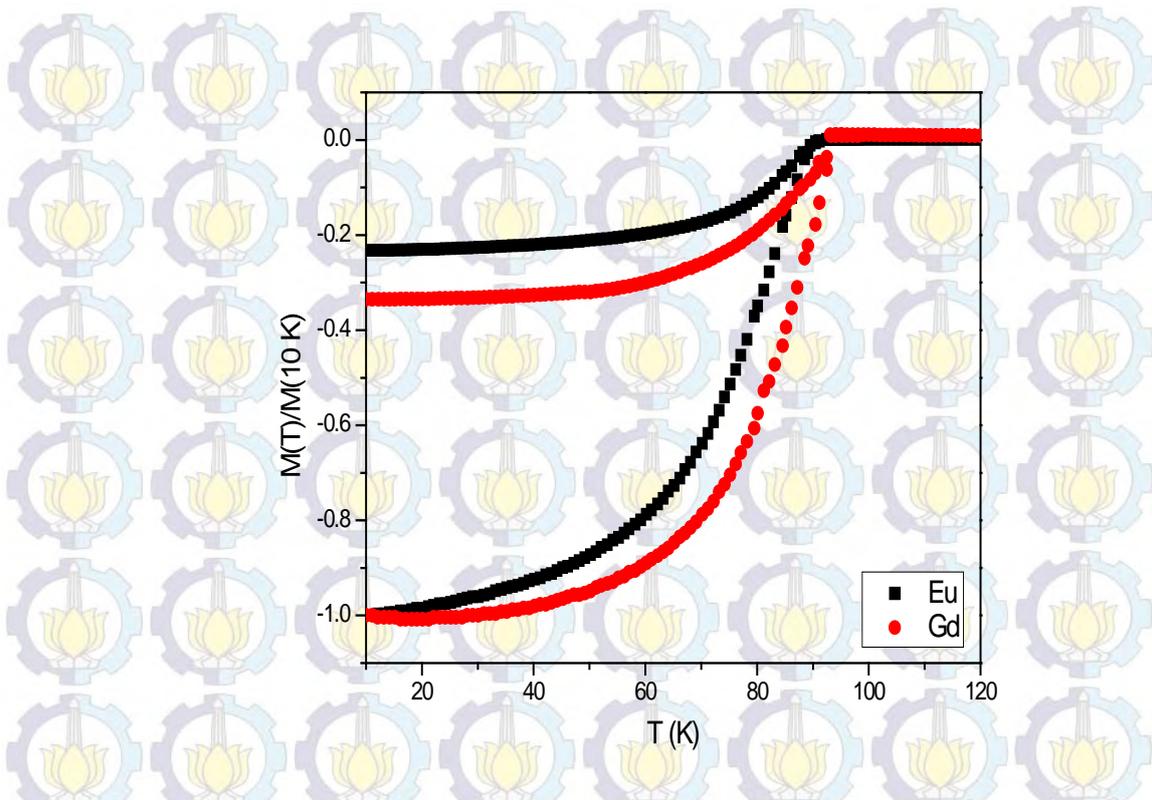
Gambar 5.8. Kurva rapat arus kritis ( $J_c$ ) terhadap kuat medan magnetik ( $H$ ) untuk sampel superkonduktor  $Nd_xY_{1-x}-123$  ( $x = 0,25, 0,5$ ) : pada medan negatif

Dari hasil-hasil karakterisasi, pengamatan dan pengukuran yang telah diuraikan di atas, maka dapat ditarik kesimpulan sementara bahwa proses sintesis sampel substitusi Nd pada superkonduktor  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  dengan menggunakan *wet-mixing method* telah berhasil dilakukan. Dari kedua analisis *Rietveld* menggunakan data XRD dan HRPD, diperoleh bahwa parameter kisi dan ortorombisitas bertambah dengan penambahan Nd dalam  $Nd_xY_{1-x}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ . Penambahan unsur Nd juga menghasilkan perubahan jumlah oksigen, dimana faktor hunian oksigen pada posisi O(4) berkurang dengan penambahan Nd. Superkonduktivitas ( $T_c$ ) meningkat dengan kehadiran oksigen (P. Benzi 2004), akan tetapi berkurangnya O(4) justru menambah terciptanya *point defect (oxygen vacancy)* yang berperan sebagai *pinning center* sehingga mampu meningkatkan rapat arus kritis ( $J_c$ ).

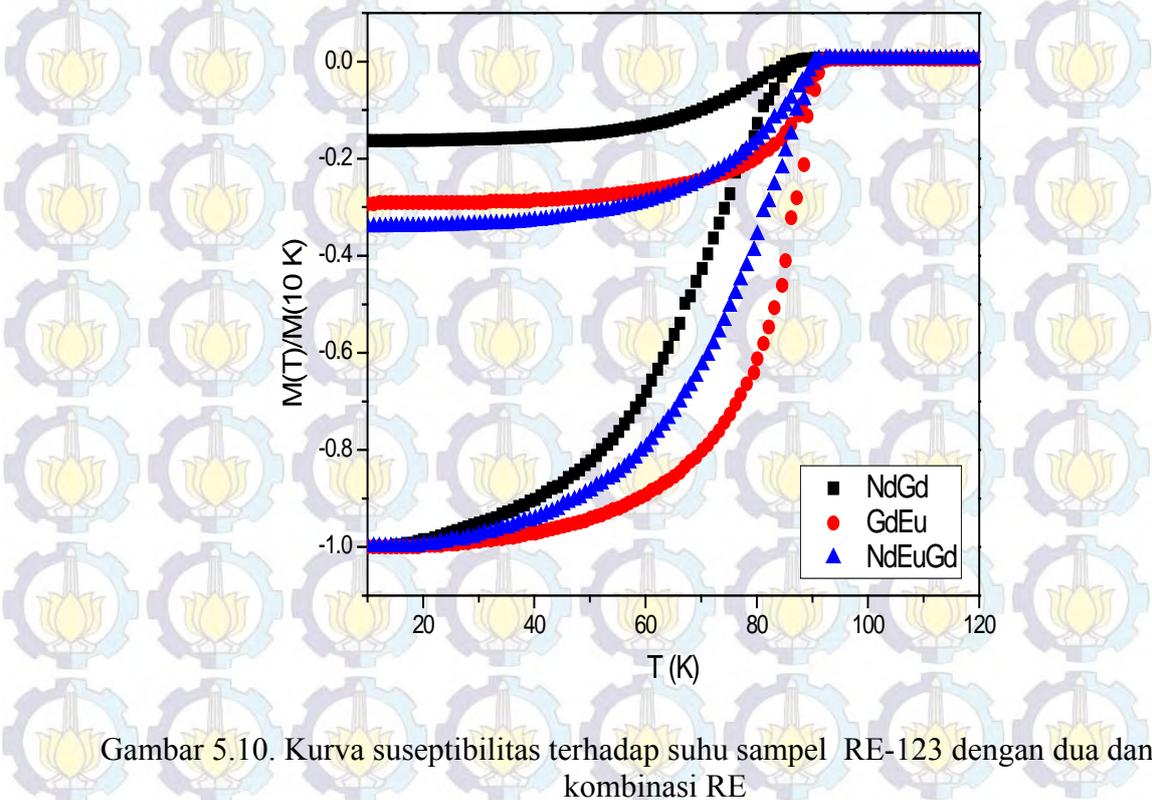
Yao dan kawan-kawan melaporkan suhu kritis superkonduktor YBCO sekitar 91 K dan NBCO sekitar 94 K, jadi ada peningkatan suhu kritis sekitar 3 K. Pada penelitian ini dihasilkan suhu kritis untuk superkonduktor  $Nd_{0,25}Y_{0,75}-123$  sekitar 91 K dan superkonduktor  $Nd_{0,5}Y_{0,5}-123$  sekitar 92 K. Sehingga dapat dikatakan bahwa penambahan unsur Nd pada superkonduktor YBCO mampu meningkatkan harga suhu kritis.

### 5.1.2. Superkonduktor RE-123

Hasil pengukuran suseptibilitas terhadap suhu untuk sampel RE-123 dengan kombinasi satu RE diperlihatkan pada Gambar 5.9 dan untuk sampel dengan kombinasi dua dan tiga kombinasi RE diperlihatkan pada Gambar 5.10. Pengukuran magnetisasi ( $M$ ) sebagai fungsi suhu ( $T$ ) dilakukan dengan menggunakan SQUID. Untuk dapat melihat perbedaan sifat magnetik masing-masing bahan, maka dibuat kurva ternormalisasi. Gambar 5.9 memperlihatkan perbedaan suseptibilitas relatif ( $\chi(T)/\chi(10K)$ ) yang signifikan dari kurva FC dan ZFC sampel Eu-123 dan Gd-123. Terlihat bahwa ketahanan sifat superkonduktor dalam medan magnetik yang diberikan pada sampel Gd-123 lebih besar dibandingkan sampel Eu-123. Sedangkan perbedaan suseptibilitas relatif ( $\chi(T)/\chi(10K)$ ) dari kurva FC dan ZFC untuk sampel  $\text{Eu}_{0,5}\text{Gd}_{0,5-123}$ ,  $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5-123}$  dan  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  yang diperlihatkan pada Gambar 5.10 mengindikasikan bahwa ketahanan sifat superkonduktor dalam medan magnetik yang diberikan pada sampel  $\text{Eu}_{0,5}\text{Gd}_{0,5-123}$  lebih besar dibandingkan sampel  $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5-123}$  dan  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . Hal tersebut didukung oleh nilai suhu kritis ( $T_c$ ) dari masing-masing sampel, dimana suhu kritis sampel Gd-123 lebih besar dibandingkan sampel Eu-123 dan suhu kritis sampel  $\text{Eu}_{0,5}\text{Gd}_{0,5-123}$  lebih besar dibandingkan sampel  $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5-123}$  dan  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  seperti terlihat pada Tabel 5.3.



Gambar 5.9. Kurva suseptibilitas terhadap suhu sampel RE-123 dengan satu kombinasi RE



Gambar 5.10. Kurva suseptibilitas terhadap suhu sampel RE-123 dengan dua dan tiga kombinasi RE

Tabel 5.3. Hasil pengukuran suhu kritis ( $T_c$ ) menggunakan SQUID untuk sampel  $REBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  (RE=Nd, Eu, Gd) dengan satu, dua dan tiga kombinasi unsur tanah jarang (*rare earth*)

Sampel	FC		ZFC	
	$T_{c-0}^{inter}$ (K)	$T_{c-0}^{intra}$ (K)	$T_{c-0}^{inter}$ (K)	$T_{c-0}^{intra}$ (K)
$EuBa_2Cu_3O_{7-\delta}$	89,5	92,5	89,8	92,5
$GdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$	93	93,5	93,3	93,6
$Nd_{0,5}Gd_{0,5}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$	86	86,5	87,5	88,5
$Eu_{0,5}Gd_{0,5}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$	91,5	93,1	91,6	93,1
$Nd_{0,33}Eu_{0,33}Gd_{0,33}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$	90,2	91,7	90,5	92

## 5.2. Sifat Magnetik Pada Keadaan Normal

Untuk mengetahui sifat kemagnetan sampel Nd-123 yang berukuran nanometer, maka dilakukan karakterisasi menggunakan *Vibrating Sample Magnetometer* (VSM) pada suhu ruang. Kurva magnetisasi untuk sampel Nd-123 yang diberi perlakuan *mixing* selama 30 menit dan suhu re-kalsinasi ( $T_{rc}$ ) pada 750°C selama satu jam menunjukkan histeresis yang merupakan sifat feromagnetik bahan, akan tetapi kemunculannya sangat kecil. Sedangkan hasil karakterisasi VSM sampel Nd-123 dengan  $T_{rc}$  pada 800 dan 900°C memperlihatkan sifat paramagnetik seperti terlihat pada Gambar 5.11.

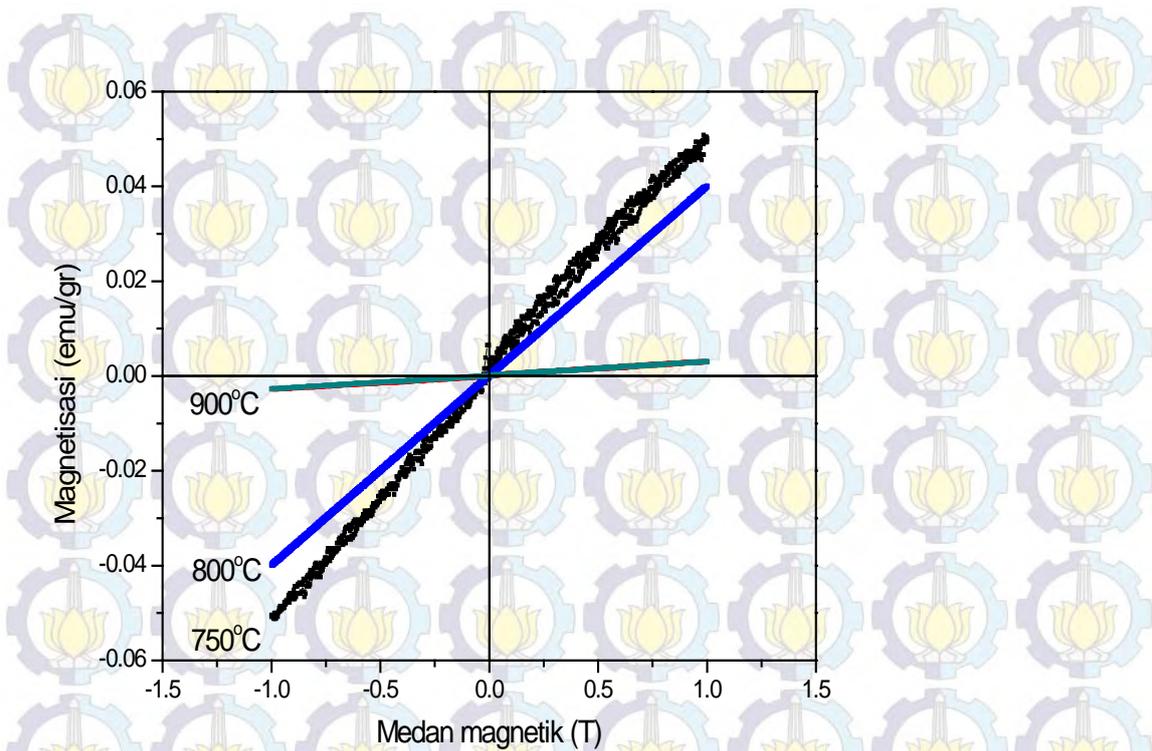
Hasil karakterisasi VSM sampel  $Nd_{0,33}Eu_{0,33}Gd_{0,33}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  dengan perlakuan *mixing* selama 24 jam dan suhu re-kalsinasi pada 750, 800, 850 dan 900°C selama 30 menit diperlihatkan pada Gambar 5.12 dan 5.13. Karakterisasi VSM untuk semua sampel  $Nd_{0,33}Eu_{0,33}Gd_{0,33}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  memperlihatkan adanya histeresis yang menandakan munculnya sifat feromagnetik lemah pada suhu ruang, seperti diperlihatkan pada Gambar 5.12 untuk sampel dengan  $T_{rc}$  pada 800, 850, 900°C dan Gambar 5.13 untuk sampel  $Nd_{0,33}Eu_{0,33}Gd_{0,33}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  dengan  $T_{rc}$  pada 750°C.

Perbedaan hasil tersebut kemungkinan disebabkan oleh perbedaan ukuran partikel sampel Nd-123. Dari hasil karakterisasi TEM pada BAB 3 (Gambar 3.21) terlihat bahwa ukuran partikel sampel Nd-123 dengan perlakuan *mixing* selama 30

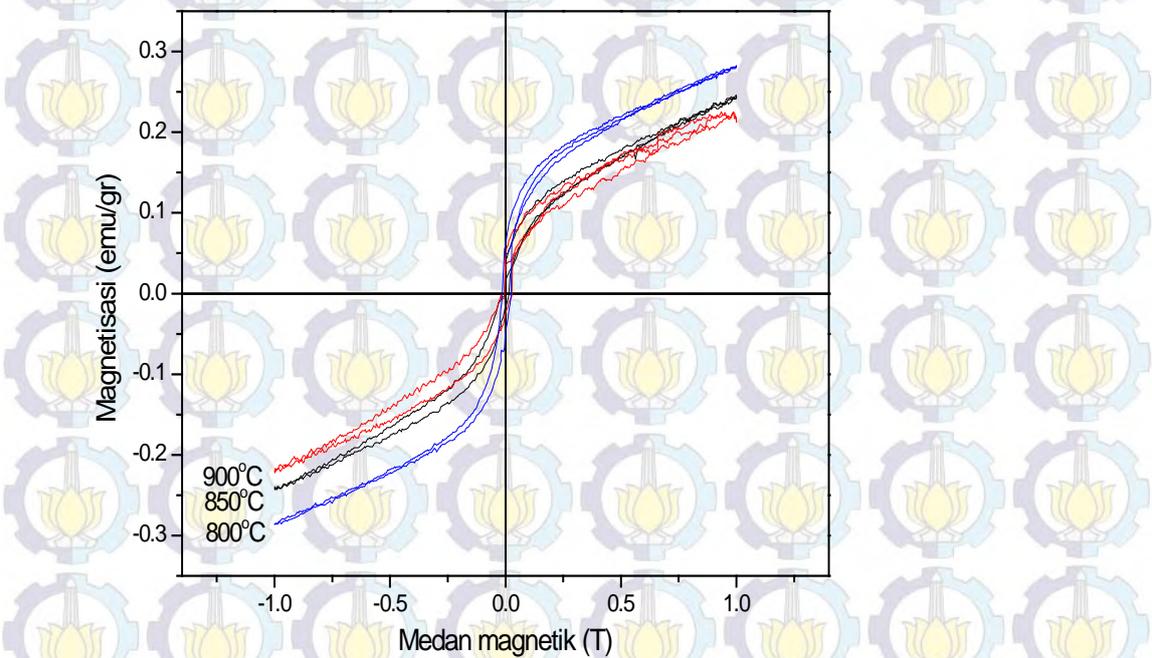
menit dengan  $T_{rc}$  pada 800 dan 900°C selama satu jam berada dalam skala ratusan nanometer. Sedangkan hasil karakterisasi TEM pada BAB 3 (Gambar 3.24) diperoleh ukuran partikel  $Nd_{0,33}Eu_{0,33}Gd_{0,33}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  dalam skala puluhan nanometer. Jadi sesuai dengan hasil penelitian yang diperoleh oleh A. Sundaresan (A. Sundaresan 2009) yang menyatakan bahwa bahan non magnetik yang berukuran nanometer akan memperlihatkan sifat ferromagnetik pada suhu ruang. Hasil tersebut juga sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Rao dan kawan-kawan (A. Shipra 2007), bahwa superkonduktor YBCO ( $T_c \approx 91$  K) dengan ukuran partikel pada skala nanometer memperlihatkan sifat ferromagnetik pada suhu ruang, sedangkan superkonduktor YBCO dalam bentuk padatan (pelet) dengan ukuran partikel pada skala mikrometer memperlihatkan sifat paramagnetik.

Partikel nano memperlihatkan gejala ferromagnetik lemah karena ada kekosongan oksigen pada permukaan yang menyebabkan terbentuknya momen magnetik (A. Sundaresan 2009). Sedangkan untuk membuktikan bahwa ada hubungan sifat magnetik dengan luas permukaan bahan, Sundaresan dan kawan-kawan (A. Sundaresan 2009) membandingkan partikel nano  $CeO_2$  dalam bentuk serbuk (*powder*) dan bentuk padatan (pelet). Dari hasil *Field Emission Scanning Electron* (FESEM) terlihat bahwa pada sampel pelet terjadi aglomerasi partikel, yang berakibat semakin kecilnya jumlah kekosongan pada permukaan bahan. Dengan membandingkan hasil pengukuran histeresis kedua sampel, terlihat bahwa momen saturasi pada sampel yang sudah terjadi aglomerasi lebih rendah dibandingkan dengan sampel serbuk. Hal tersebut mengindikasikan bahwa hubungan antara ukuran partikel, kekosongan dan permukaan bahan dapat menghasilkan sifat magnetik yang berbeda.

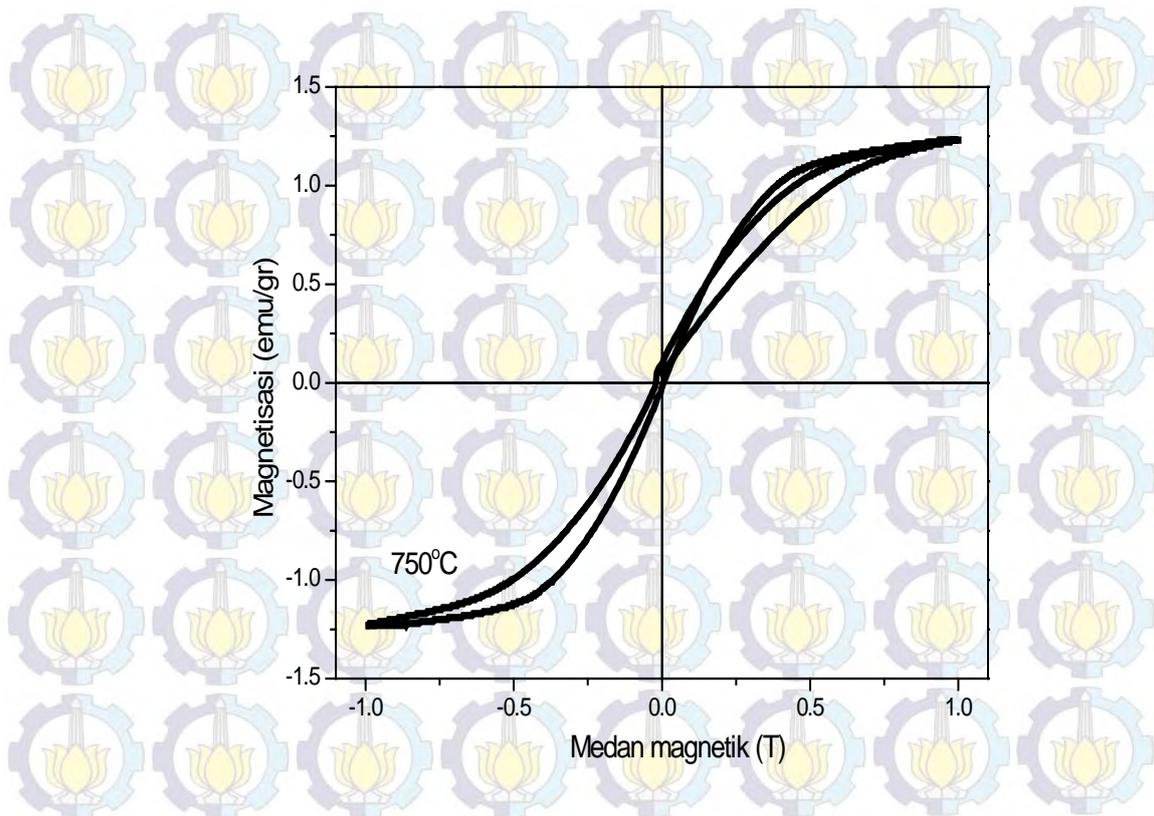
Pengukuran VSM dilakukan untuk memperoleh informasi tentang magnetisasi saturasi ( $M_s$ ), magnetisasi remanen ( $M_r$ ) dan koersivitas magnetik ( $H_c$ ) yang merupakan sifat kemagnetan bahan. Harga magnetisasi saturasi ( $M_s$ ), magnetisasi remanen ( $M_r$ ) dan koersivitas magnetik ( $H_c$ ) ditunjukkan pada Tabel 5.4.



Gambar 5.11. Hasil karakterisasi VSM dari sampel Nd-123 pada suhu re-kalsinasi 750, 800 dan 900°C



Gambar 5.12. Hasil karakterisasi VSM sampel Nd<sub>0.33</sub>Eu<sub>0.33</sub>Gd<sub>0.33</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> dengan perlakuan *mixing* selama 24 jam dan suhu re-kalsinasi pada 800, 850 dan 900°C selama 30 menit



Gambar 5.13. Hasil karakterisasi VSM sampel  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan perlakuan *mixing* selama 24 jam dan suhu re-kalsinasi pada  $750^\circ\text{C}$

Tabel 5.4. Harga  $M_s$ ,  $M_r$  dan  $H_c$  untuk sampel  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan perlakuan *mixing* selama 24 jam dan suhu re-kalsinasi pada  $750$ ,  $800$ ,  $850$  dan  $900^\circ\text{C}$

Sampel	$M_s$ (emu/gr)	$M_r$ (emu/gr)	$H_c$ (Oe)
$\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ( $t_s = 30$ menit, <i>mixing</i> = 24 jam)			
$T_s = 750^\circ\text{C}$	1,25	0,0015	0,07
$T_s = 800^\circ\text{C}$	0,275	0,0016	0,06
$T_s = 850^\circ\text{C}$	0,25	0,0016	0,05
$T_s = 900^\circ\text{C}$	0,23	0,0017	0,04

Dari kurva magnetisasi sebagai fungsi medan magnetik luar dan dari data yang ditampilkan pada Tabel 5.4, terlihat ada perubahan kurva magnetisasi dengan penambahan suhu pemanasan dari 750°C sampai 900°C. Nilai  $M_s$  semakin kecil dengan penambahan suhu re-kalsinasi, yang mengindikasikan bahwa semakin besar  $T_{rc}$  maka nilai magnetisasi bahan jenuh dimana tidak mengalami perubahan dengan penambahan medan aplikasi menjadi semakin kecil.  $M_r$  yang merupakan magnetisasi sisa ketika medan aplikasi magnetik ditiadakan, nilainya semakin naik dengan penambahan  $T_{rc}$ . Besar kuat medan magnetik yang diaplikasikan untuk mengembalikan magnetisasi bahan menjadi nol dari keadaan termagnetisasi saturasi ( $H_c$ ), nilainya menurun dengan penambahan  $T_{rc}$ .

Hasil tersebut sesuai dengan hasil karakterisasi TEM, dimana penambahan  $T_{rc}$  menyebabkan ukuran partikel semakin besar, dan berakibat koersif dan saturasi menurun karena partikel membentuk multidomain. Hasil yang sama diperoleh oleh Sundaresan dan kawan-kawan (A. Sundaresan 2009), dimana momen magnetik saturasi partikel nano berkurang dengan penambahan ukuran partikel.

## BAB 6

### KESIMPULAN DAN SARAN

#### 6.1. Kesimpulan

Laporan disertasi secara keseluruhan merangkum tiga kelompok besar berdasarkan perbedaan perlakuan suhu pemanasan dan substitusi unsur yang diberikan pada proses sintesis. Kelompok *pertama*, sintesis sampel  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan suhu re-kalsinasi antara  $650\text{-}970^\circ\text{C}$  (karakterisasi XRD, SEM, TEM). *Kedua*, sintesis sampel  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan  $x = 0, 0,25, 0,5, 0,75$  dan  $n = 1$  dengan suhu re-kalsinasi  $970^\circ\text{C}$  (karakterisasi XRD, HRPD, SEM, SQUID). *Ketiga*, sintesis sampel  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan variasi unsur tanah jarang, masing-masing dengan suhu re-kalsinasi  $970^\circ\text{C}$  (karakterisasi XRD, SRD, SEM, SQUID). Proses pencocokan puncak difraksi (*search match*) menggunakan program *Match!* Sedangkan proses penghalusan parameter-parameter pola difraksi (*refinement*) dilakukan dengan analisis *Rietveld* menggunakan program *Rietica* dan *FullProf*.

Berdasarkan hasil penelitian yang telah dilakukan di atas, maka dapat disimpulkan beberapa hal, yaitu

1. Proses sintesis superkonduktor  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (RE=Y, Nd, Eu, Gd) dengan *wet-mixing method* dan  $\text{HNO}_3$  sebagai pelarut telah berhasil memperoleh kristal  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan prosentase berat tertinggi sekitar 99,1 % (mendekati fasa tunggal).
2. Penambahan unsur Nd pada superkonduktor  $\text{Nd}_x\text{Y}_{(1-x)}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan  $x = 0, 0,25, 0,5, 0,75$  dan  $n = 1$  menunjukkan bertambahnya nilai parameter kisi, volume sel satuan dan ortorombisitas. Urutan nilai parameter kisi, volume sel satuan dan ortorombisitas dari yang terkecil sampai terbesar adalah Y-123,  $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}$ -123,  $\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}$ -123,  $\text{Nd}_{0,75}\text{Y}_{0,25}$ -123 dan Nd-123. Urutan tersebut merupakan kebalikan dari pergeseran sudut  $2\theta$ . Penambahan unsur Nd juga mengakibatkan migrasi oksigen yang diperlihatkan dengan berkurangnya faktor hunian oksigen (*occupancy*) pada posisi O(4). Penambahan unsur Nd pada superkonduktor  $\text{Nd}_x\text{Y}_{(1-x)}$ -123 dapat meningkatkan nilai suhu kritis, rapat arus kritis dan sifat

ketahanan superkonduktor terhadap medan magnet. Suhu kritis dan rapat arus kritis sampel  $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{-123}$  masing-masing adalah 90,5 K dan  $4 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$ , sedangkan suhu kritis dan rapat arus kritis sampel  $\text{Nd}_{0,5}\text{Y}_{0,5}\text{-123}$  masing-masing adalah 91,5 K dan  $1 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$ .

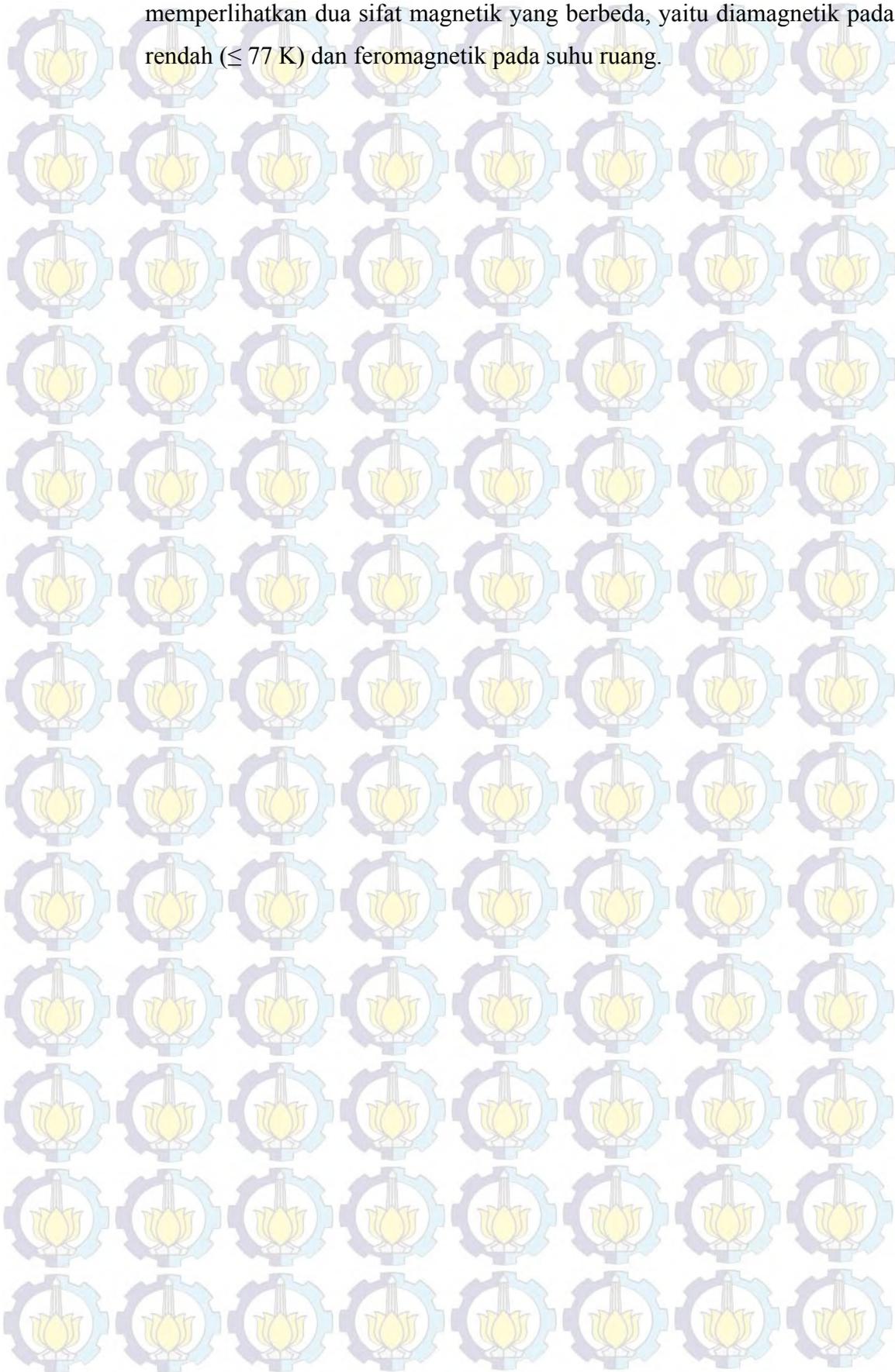
3. Kombinasi satu, dua dan tiga unsur RE (Nd, Eu, Gd) pada superkonduktor  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  menghasilkan perubahan nilai parameter kisi serta volume sel satuan, dengan urutan dari terbesar sampai terkecil, yaitu Nd-123,  $\text{Nd}_{0,5}\text{Eu}_{0,5}\text{-123}$ ,  $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{-123}$ ,  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , Eu-123,  $\text{Eu}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{-123}$  dan Gd-123. Urutan tersebut merupakan kebalikan dari pergeseran sudut  $2\theta$  yang diakibatkan oleh perubahan nilai parameter kisi. Suhu kritis dan sifat ketahanan superkonduktor terhadap medan magnet superkonduktor Gd-123 (93,6 K) lebih besar dibandingkan superkonduktor Eu-123 (92,5 K). Penggantian Nd dengan kombinasi dua dan tiga RE dapat meningkatkan baik suhu kritis maupun sifat ketahanan superkonduktor terhadap medan magnet dengan urutan dari terkecil sampai terbesar adalah  $\text{Nd}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{-123}$  (88,5 K),  $\text{Nd}_{0,33}\text{Eu}_{0,33}\text{Gd}_{0,33}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (92 K) dan  $\text{Eu}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{-123}$  (93,1 K).
4. Proses sintesis dengan *wet-mixing method* dan  $\text{HNO}_3$  sebagai pelarut, serta perlakuan *mixing* selama 24 jam pada suhu re-kalsinasi 700, 750, 800 dan  $900^\circ\text{C}$  telah menghasilkan sampel  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan ukuran partikel dalam skala nanometer. Sampel  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan ukuran partikel dalam skala nanometer (lebih kecil dari 50 nm) memperlihatkan sifat feromagnetik pada suhu ruang, sedangkan sampel dengan ukuran partikel lebih besar dari 100 nm memperlihatkan sifat paramagnetik.

## 6.2. Saran

Berdasarkan hasil penelitian yang telah diperoleh, beberapa hal dianggap penting untuk dilakukan penelitian lanjut, khususnya untuk sampel  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .

1. Dilakukan karakterisasi HRPD untuk sampel  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan satu, dua dan tiga kombinasi RE, sehingga diperoleh kandungan oksigen dan selanjutnya dapat dibandingkan dengan harga suhu kritis.
2. Pada proses sintesis perlu dilakukan penambahan waktu pengadukan, sehingga sampel yang dire-kalsinasi pada suhu tinggi ( $970^\circ\text{C}$ ) sampel mampu

memperlihatkan dua sifat magnetik yang berbeda, yaitu diamagnetik pada suhu rendah ( $\leq 77$  K) dan feromagnetik pada suhu ruang.



## DAFTAR PUSTAKA

- A. Bourdillon, N. X. Tan Bourdillon (1994), *High Temperature Superconductors : Processing and Science*, Academic Press, Inc.
- A. Ehmann, J.G., S. Kemmler-Sack, S. Losch, T. Rentschler, W. Wischert, P. Zoller, P. Kessler and H. Lichte (1993), *Superconductivity and substitution of Bi-1212*, Physica C 215 : p. 83-91.
- A. Fukunaga, S. Chu, M. E. McHenry and M. Nagumo (1999), *Synthesis, Structure, and Superconducting Properties of NbC Nanorods and Nanoparticles*, Materials Transactions, JIM 40 : 118-122.
- A. Hu, N. Sakai, H. Zhou, K. Inoue, N. Chikumuto, M. Murakami (2004), *Air processing of ternary (Sm, Eu, Gd)Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>*, Physica C 402 : 127-135.
- A.I. Goldman, B.X. Yang, J. Tranquada, J.E. Crow, and C.S. Jee (1987), Phys. Rev. B 36, 7234.
- A. Kern, A. Geyer, W. Eysel, (1993), Miner.-Petrog. Inst., Univ. Heidelberg, Germany, ICDD Grant-in-Aid.
- A. Knizhnik, G.E. Shter, G.S. Grader, G.M. Reisner, Y. Eckstein (2003), *Interrelation of preparation conditions, morphology, chemical reactivity and homogeneity of ceramic YBCO*, Physica C 400 : 25-35.
- A.K. Pradhan, M. Muralidhar, M. Murakami, N. Koshizuka (2000), *Studies of flux pinning behavior in melt-processed ternary (Nd-Eu-Gd)Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> superconductors*, Supercond. Sci. Technol. Vol. 13, No. 6 : 761-765.
- A.K. Saxena (2010), *High-Temperature Superconductors*, Springer Series in Materials Science.
- A. Shipra, Gomathi, A. Sundaresan, C.N.R. Rao (2007), *Room-temperature ferromagnetism in nanoparticles of superconducting materials*, Solid State Communications 142 : 685–688.
- A. Sundaresan, C.N.R. Rao (2009), *Ferromagnetism as a universal feature of inorganic nanoparticles*, Nano Today 4 : 96-106.

- B.A. Hunter (1997), *Rietica for Windows versi 1.7.7*.
- B.D. Cullity (1978), *Element of x-ray Diffraction*, Addison Wesley Publishing Company, Inc, Second Edition, England.
- B. Dwir, M. Affronte, D. Pavuna (1989), *Evidence for enhancement of critical current by intergrain Ag in YBaCuO-Ag ceramics*, Applied Physics Letters 55 : 399 - 401.
- B.K. Agarwal (1991), *X-Ray Spectroscopy*, Second Edition, Springer Verlag, Berlin.
- B.R. Lehndorff (2001), *High-Tc Superconductors for Magnet and Energy Technology*, Springer Verlag, Berlin.
- C. Cui, H. Mou, T. Wang, S. Li, J. Li, L. Hongyue, L. Zhou, X. Wu (1990), *Critical currents in melt textured YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> superconductors*, Cryogenics 30 : 603–605.
- C.D. Pemmaraju, S. Sanvito (2005), Phys. Rev. Lett. 94 : 217205.
- C.J. Rodriguez (Version 2001), *An Introduction To The Program FullProf*, Laboratoire Leon Brillouin (CEA-CNRS), France.
- C.P. Bean, (1964), Rev. Mod. Phys. 36, 31.
- C. Xu, A.H., M. Ichihara, N. Sakai, I. Hirabayashi, M. Izumi (2007), *Enhanced flux pinning of air-processed Gd-123 by doping ZrO<sub>2</sub> nanoparticles*, Physica C 460-462 : 1341-1342.
- C. Xu, A.H., M. Ichihara, N. Sakai, M. Izumi, I. Hirabayashi (2005), *Enhanced J<sub>c</sub> in air-processed GdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-d</sub> superconductors*, Physica C :\_Superconductivity 426-431 : p. 613-617.
- D. Dube, B. Champagne, Y. Le Page (1989), Materials Letters 8 : 283.
- D. Hughes (2001), *The critical current of superconductors : an historical review*, Low Temperature Physics 27 : 9-10.
- D.K. Fork, D.B. Fenner, R.W. Barton, Phillips, M. Julia, G.A.N. Connell, J.B. Boyce, T.H. Geballe (1990), *High critical currents in strained epitaxial YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-d</sub> on Si*, Applied Physics Letters 57 : 1161 - 1163.
- D.P. Young, D.Hall, M.E. Torelli, Z. Fisk, J.L. Sarrao, J.D. Thompson, H.R. Ott, S.B. Oseroff, R.G. Goodrich, R. Zysler (1999), Nature 397 : 412.
- E. Antipov, A. Abakumov (1994), ICDD Grant-in-Aid, Moscow State Univ., Russia.

E. Ban, Y.I., Y. Matsuoka, G. Nishijima, K. Watanabe (2007), *Microstructures and critical density of filamentary Eu-Ba-Cu-O with Zr and Zn additions*, Physica C : Superconductivity 463-465 : p. 554-558.

H. Gu, P.L.Ho, K.W.T. Tsang, L. Wang, B. Xu, J. Am (2003), Chem. Soc. 125 : 15702.

H. Putz, K. Brandenburg GbR (2012), *Molecular Structure Visualization Version 3.2 (crystal impact)*.

H. Salamati, P.Kameli (2003), *Effect of deoxygenation on the weak-link behavior of  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  superconductors*, Solid State Communications 125 : 407-411.

H. Salamati, P.Kameli (2004), *The effect of Bi-2212 phase on the weaklink behavior of Bi-2223 superconductors*, Physica C : Superconductivity 403 : 60-66.

H. Walter, M.P.D., B. Bringmann, A. Leenders and H.C. Freyhardt (2000), *Melt-textured YBaCuO with High Trapped Fields up to 1.3 T at 77 K*, Journal of Materials Research 15 : 1231-1234.

J.G. Bednorz, K.A. Muller (1987), Phys. B 64 : 189.

J. Halbritter (1992), *On extrinsic effects in the surface impedance of cuprate superconductors by weak links*, Journal of Applied Physics 71 : 339 - 343.

J. Kaduk, Y.M. Chen (1994), Amoco Corporation, Naperville, IL, USA.

J. Maguire, D.F., J. Yuan, D. Lindsay, D. Knoll, S. Bratt, Z. Wolff, S. Kurtz (2009), *Development and Demonstration of a Fault Current Limiting HTS Cable to be Installed in the Con Edison Grid*, IEEE Trans. Appl. Supercond. 19 : 1740.

J. Thompson, Fitz Gerald, J., Withers, R., Barlow, P., Anderson, J. (1989), Mater. Res. Bull. 24 : 505.

J.Q. Dai, Z.X. Zhao., A. Hu (2004), *Melt processing and superconducting properties of single-domain  $GdBa_2Cu_3O_y$ ,  $(Sm_{0.5}Gd_{0.5})Ba_2Cu_3O_y$  and  $(Sm_{0.33}Eu_{0.33}Gd_{0.33})Ba_2Cu_3O_y$  superconductors fabricated in air*, Physica C 406 : 63-71.

K.C. Chung, S.C. Choi., H.S. Kim, B.S. Lee, S.M. Ihm, D. Youm (2003), *Growth properties and critical current measurements of  $Sm_{1+x}Ba_{2-x}Cu_3O_{7-\delta}$  films on biaxially textured Ni tapes*, Physica C 384 : 291-296.

- K. Ogasawara, N. Sakai, M. Murakami (2000), *Structure of subgrains in large single-grain RE-Ba-Cu-O (RE=Y, Sm, Nd) bulk superconductors*, J. Cryst. Growth (Proceedings of the first Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology, Sendai, Japan Vol. 229, No. 1-4 : 358-364.
- K. Skold, D.L. Price (1986), *Neutron Scattering*, Academic Press, Inc 23.
- L.C. Pathak, S.K. Mishra, S.K. Das, D. Bhattacharya, K.L. Chopra (2001), *Effect of sintering atmosphere on the weak-link behaviour of YBCO superconductors*, Physica C: Superconductivity 351 : 295–300.
- L.J. Sun, C.Y. Tang, X. Yao, Y. Jiang (2007), *Melt-textured growth of NdBCO bulk seeded by NdBCO thin film*, Physics C 460-462 : 1339-1340.
- L. Rostila, J. Lehtonen, M. Masti, N. Lallouet, J.M. Saugrain, A. Allais, K. Schipll., G. B. F. Schmidt, G. Marot, A. Ravex, A. Usoskin, F. Gomory, B. Klinc̆ok, J., et al. (2006), *Design of a 30 m long 1 kA 10 kV YBCO cable*, Supercond. Sci. Technol. 19 : 418.
- M.A. Omar (1974), *Elementary Solid State Physics*, World Student Series Edition Addison-Wesley Publishing Company.
- M. Inagaki, M. O. ( 2006), *Internal friction and oxygen migration in  $Nd_xY_{1-x}Ba_2Cu_3O_y$  ( $x=0.0-1.0$ ) superconductors at low frequencies*, Journal of Alloys and Compounds 408-412 : p. 223-225.
- M.I. Petrov, D.A. Balaev, Y.S. Gokhfeld, A.A. Dubrovskiy, K.A. Shaykhutdinov (2007), *Enhancement of pinning in cerium doped  $Y_{(1-x)}Ce_xBa_2Cu_3O_7$  HTSC*, Physica C 460-462 : 1192-1193.
- M. I. Youssif, A.A. Bahgat, I.A. Ali (2000), *AC Magnetic Susceptibility Technique for the Characterization of High Temperature Superconductors*, Egypt. J. Sol. Vol. 23 No. 2 : 231-250.
- M.J. Kramer, A. Karion, K.W. Dennis, M. Park, and R.W. Mccallum (1994), *Enhanced Superconductivity in  $Nd_{1+x}Ba_{2-x}Cu_3O_{7+\delta}$  by Low Oxygen Partial Pressure Annealing*, Journal of Electronic Materials 23 : 11.
- M.K. Wu, J.R. Ashburn, C.J. Torny, P.H. Hor, R.L. Meng, L. Gao, Z.J. Huang, Y.Q. Wang and C.W. Chu (1987), Phys. Rev. Lett. 58 : 908.

M. Machida, K. Yasuoka, K. Eguchi, H. Arai (1991), *Solid State Chem.* 91 : 176.

M. Murakami, M.R. Koblischka (2003), *Magnetic Properties of Superconducting and Nonsuperconducting  $(Nd_{0.33}Eu_{0.33}Gd_{0.33})Ba_2Cu_3O_y$* , *Journal of Superconductivity* : 415-419.

M. Muralidhar, N.S., M. Jirsa, M. Murakami, N. Koshizuka, I. Hirabayashi (2005), *Analysis of mixed ternary  $LREBa_2Cu_3O_y$  nano-structures by STM and TEM*, *Physica C* 426-431 : 196-201.

M. Muralidhar, N.Sakai, M. Nishiyama, M. Jirsa, T. Mahi, M. Murakami (2003), *Pinning characteristics in chemically modified  $(Nd, Eu, Gd)$ -Ba-Cu-O superconductors*, *Appl. Phys. Letters* 82, No. 6 : 943-945.

M.R. Koblischka, A. Koblischka-Veneva, E.S. Reddy, G.J. Schmitz, K. Ogasawara, M. Murakami (2003), *Orientations of  $Y_2BaCuO_5$  and YBCO within melt-textured and directional solidified samples studied by EBSD*, *Physica C* 392-396 : 589-595.

M.R. Koblischka, M.M., Masato Murakami (2000), *Flux pinning sites in melt-processed  $(Nd_{0.33}Eu_{0.33}Gd_{0.33})Ba_2Cu_3O_y$  superconductors*, *Physica C: Superconductivity* 337 : p. 31-38.

M.R. Koblischka, M. Winter, P. Das, U. Hartmann, A. Koblischka-Veneva, F. Mucklich (2008), *Nanostripes in  $GdBa_2Cu_3O_x$  high- $T_c$  superconductors*, *Materials Science and Engineering B*.

M. Tomita, M. Murakami (2003), *Nature* 421 : 517.

N. Hari Babu, K. Iida, Y. Shi, D.A. Cardwell (2006), *Processing of high performance  $(LRE)$ -Ba-Cu-O large, single-grain bulk superconductors in air*, *Physica C* 445-448 : 286-290.

N. Ogawa, I. Hirabayashi, S. Tanaka (1991), *Preparation of a high- $J_c$  YBCO bulk superconductor by the platinum doped melt growth method*, *Physica C : Superconductivity* 177 : 101-105.

N. Mori, K. Dateki, T. Hirao, K. Ogi (2006), *Growth of faceted 123 c rystals in superconductive YBCO/Ag composites fabricated by infiltration-growth method*, *Physica C* 445-448 : 308-311.

- N. Sakai, K. Inoue, S. Nariki, A. Hu, M. Murakami, I. Hirabayashi (2005), *Experiment for growing large Gd-Ba-Cu-O-Ag bulk superconductor*, Physica C 426-431 : 515-519.
- N. Sakai, S. Nariki, K. Nagashima, M. Miryala, M. Murakami, I. Hirabayashi (2007), *Magnetic properties of melt-processed large single domain Gd-Ba-Cu-O bulk superconductor 140 mm in diameter*, Physica C 460-462 : 304-309.
- N. Wong, H. McMurdie, B. Paretzkin, C. Hubbard, A. Drago (1987), ICDD Grant-in-Aid, NBS (USA).
- N. Wong, H. McMurdie, B. Paretzkin, C. Hubbard, A. Drago (1988), ICDD Grant-in-Aid, NIST (USA).
- N. Wong, B. Paretzkin (1991), Private Communication.
- P. Benzi, E. Bottizzo, N. Rizzi (2004), *Oxygen determination from cell dimensions in YBCO superconductors*, Journal of Crystal Growth 269 : 625-629.
- P. Diko (2006), *Microstructural limits of TSMG REBCO bulk superconductors*, Physica C 445-448 : 323-329.
- P. Esquinazi, A. Setzer, R. Hönne, C. Semmelhack, Y. Kopelevich, D. Spemann, T. Butz, B. Kohlstrunk, M. Lössche (2002), Phys. Rev. B 66 : 024429.
- P. McGinn, W. Chen, N. Zhu, M. Lanagan, U. Balachandran (1990), *Microstructure and critical current density of zone melt textured YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6+x</sub>*, Applied Physics Letters 57 : 1455 - 1457.
- P. Schätzle, W. Bieger, U. Wiesner, P. Verges and G. Krabbes (1996), *Melt processing of (Nd,Y)BaCuO and (Sm,Y)BaCuO composites*, Superconductor Science and Technology 9 : 869.
- P. Tixador, (2010), *Development of superconducting power devices in Europe*, Physica C 470 : 971-979.
- Q.R. Zhang, Z.A. Xu, J.S. Wang, M.Q. Tan, M.H. Fang, H. Zhang, Z.H. He (1993), Chin. Sci. A23 : 409.
- R.D. Shannon (1976), *Revised effective ionic radii and systematic studies of interatomic distances in Halides and Chalcogenides*, Acta Cryst A32 : 751-767.
- R.H. Kodama, S.A. Makhlof, A.E. Berkowitz (1997), Phys. Rev. Lett. 79 : 1393.

R. Shpanchenko, E. Antipov, A. Abakumov, L. Lykova, L. Kovba (1988), Vestn. Mosk. Uni., Ser. 2 : Khim. 29, 589.

R.W. Chantrell, K. O'Geady, in: R. Gerber, C.D. Wright, G. Asti (Eds.) (1994), Applied Magnetism, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht : p.113.

S. Elschner, S. Gauss (1992), Supercond. Sci. Technol 5 : 300.

S. Eriksson, L.G. Johansson, L. Borjesson, M. Kakihana (1989), Physica C : Superconductivity 162, 59.

S. Haindl, M. Eisterer, N. Horhager, H.W. Weber, H. Walter, L. Shlyk, G. Krabbes, N. Hari Babu, D.A. Cardwell (2005), *Novel methods to characterize bulk RE-BCO superconductors*, Physica C 426-431 : 625-631.

S. Haindl, M. Kidszun, A. Kauffmann, K. Nenkov, N. Kozlova, J. Freudenberger, T. Thersleff, J. Hänisch, J. Werner, E. Reich, L. Schultz, and B. Holzapfel (2010), *High Upper Critical Fields and Evidence of Weak-Link Behavior in Superconducting LaFeAsO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub> Thin Films*, Phys. Rev. Lett. 104.

S.I. Yoo, N. Sakai, H. Takaichi, T. Higuchi, and M. Murakami (1994), *Melt processing for obtaining NdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> superconductors with high T<sub>c</sub> and large J<sub>c</sub>*, Appl. Phys. Lett. 65 : 633.

S. Mukoyama, M.Y., N. Hirano, N. Amemiya, N. Kashima, S. Nagaya, T. Izumi, Y. Shiohara (2007), *Study of an YBCO HTS transmission cable system*, Physica C: Superconductivity 463-465 : p. 1150-1153.

S. Nariki, N. Sakai, M. Murakami (2005), Supercond. Sci. Technol. 18 : S126.

S. Nariki, N. Sakai, M. Murakami, I. Hirabayashi (2006), *Fabrication and superconducting properties of Gd-Ba-Cu-O single-grain bulk with barium cerate addition*, Physica C 445-448 : 291-294.

S. Pratapa, B.O. Connor, B. Hunter (2002), *A comparative study of single-line and Rietveld strain-size evaluation procedures using MgO ceramics*, Appl. Cryst. 01 35 : 35.

S. Suzuki, M. Suzuki, J. Walter (2001), *Superconductivity and magnetism in tantalum-graphite multilayers based on natural graphite*, Solid State Communications 118 : 523-527.

- S. Suasmoro, M.F.K., A. Khafi, G. Trolliard, D.S. Smith, J.P. Bonnet (2012), *Microstructural and electrical characterization of bulk  $YBa_2Cu_3O_{7-d}$  ceramics*, Ceramics International 38 : p. 29-38.
- S.Y. Chen, Y.S. Hsiao, C.L. Chen, D.C. Yan, I.G. Chen, M.K. Wu (2008), *Remarkable peak effect in  $J_c(H, T)$  of  $Y-Ba-Cu-O$  bulk by using infiltration growth (IG) method*, Materials Science and Engineering B 151 : 31-35.
- T. Chatterji (2006), *Neutron Scattering from Magnetic Materials*, Institut Laue-Langevin, France.
- T.Goto, E. Sato, K. Watanabe, G. Nishijima, Y. Matsui, T. Nagai, C. Tsuruta (2005), *High critical-current density and ultra high-voltage TEM study of filamentary 0,1 at % Zr-doped  $(Nd_{0.33}Eu_{0.38}Gd_{0.28})Ba_2Cu_3O_x$  superconductors*, Physica C 425 : 166-170.
- T. Nevriya, P. Holba, S.Durcok, D.Zemanova, E.Pollert and A.Trisk (1989), Physica C 157 : 334.
- T. Rentschler, S.K.S., P. Kessler and H. Lichte (1994), *Superconducting properties of Pb-free and Pb-substituted bulk ceramics of Bi-2212 cuprates*, Physica C 219 : p. 167-175.
- T. Sekitani, N.M., S. Ikeda, Y.H. Matsuda, Y. Shiohara (2004), *Upper critical field for optimally-doped  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$* , Physica B: Condensed Matter 346-347 : 319-324.
- V.A. Drozd, I.I. Baginski, S.A. Nedilko, V.S. Mel'nikov (2004), *Oxygen stoichiometry and structural parameters of  $Sm_{1+x}Ba_{2-x}Cu_3O_y$  solid solutions versus composition and temperature*, Journal of Alloys and Compounds 384 : 44-50.
- W. Bieger, U. Wiesner, G. Krabbes, P. Schätzle, A. Bauer, P. Verges and L. Zelenina (1996), *Melt texturing and properties control of  $Nd_{1+y}Ba_{2-y}Cu_3O_x$  bulk materials*, Journal of Low Temperature Physics 105 : 1445-1450.
- W.G. Suharta, D. Darminto, S. Suasmoro (2007), *Optimasi doping Pt dan Ce pada sintesis superkonduktor  $(NEG)_{1+x}Ba_{2-x}Cu_3O_{7-d}$  dengan inklusi fase  $(NEG)_2BaCuO_{5-d}$  menggunakan metode OCMTG*, Laporan Hibah Pekerti 2007.
- W.M. Woch, R. Zalecki, A. Kolodziejczyk, H. Sudra, G. Gritzner (2008), *Magnetic susceptibility and critical currents of  $(Tl_{0.5}Pb_{0.5})Sr_2(Ca_{0.9}Gd_{0.1})Cu_2O_y$  superconductor*, Materials Science-Poland 26 : 4.

W. Schreiner (1994), ICDD Grant-in-Aid, IC Laboratories, Katonah, NY, USA.

X. Chen, W. Eysel (1995), ICDD Grant-in-Aid, Mineral-Petrograph Inst., Univ. Heidelberg, Germany.

X.D. Wu, S.R. Foltyn, P. Arendt, J. Townsend, C. Adams, I.H. Campbell, P. Tiwari, Y. Coulter, D.E. Peterson (1994), *High current YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> thick films on flexible nickel substrates with textured buffer layers*, Applied Physics Letters 65 : 1961 - 1963

X.D. Wu, R.E. Muenchausen, S. Foltyn, R.C. Estler, R.C. Dye, A.R. Garcia, N.S. Nogar, P. England, R. Ramesh, D.M. Hwang, T.S. Ravi, C.C. Chang, T. Venkatesan, X.X. Xi, Q. Li, A. Inam (1990), *Large critical current densities in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> thin films made at high deposition rates*, Applied Physics Letters 57 : 523 - 525.

Y. Kimura, H. Matsumoto, H. Fukai, N. Sakai, I. Hirabayashi, M. Izumi, M. Murakami (2006), *Pulsed field magnetization for Gd-Ba-Cu-O superconductors impregnated with Bi-Sn-Cd alloy*, Physica C 445-448 : 408-411.

Y. Li, R. Duan, X. Xiong, B. Wang, G. Cao, L. Wei, D.N. Zheng, Z.X. Zhao, J.H. Ross (2004), *Positron annihilation study of the O-T phase transition for Eu<sub>1+x</sub>Ba<sub>2-x</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-d</sub> superconductors*, Physica C 402 p. 179-187.

Y.L. Jiao, L. Xiao, H.T. Ren, M.H. Zheng, Y.X. Chen (2003), *J<sub>c</sub>-B characteristics for bulk single domain YBCO superconductors*, Physica C 386 : 266-270.

Y. Nakamura, A. Shibusawa, H. Kobayashi, R. Inada, A. Oota (2007), *Evaluation of defects in RE123 superconductors from magnetic field mapping by transport current*, Physica C 463-465 : 707-711.

Y. Shi, N. Hari Babu, K. Iida, D.A. Cardwell (2006), *The influence of Nd-Ba-Cu-Ma-O generic seed crystal composition on T<sub>c</sub> of seeded, bulk (RE)-Ba-Cu-O grains*, Physica C 445-448 : 295-298.

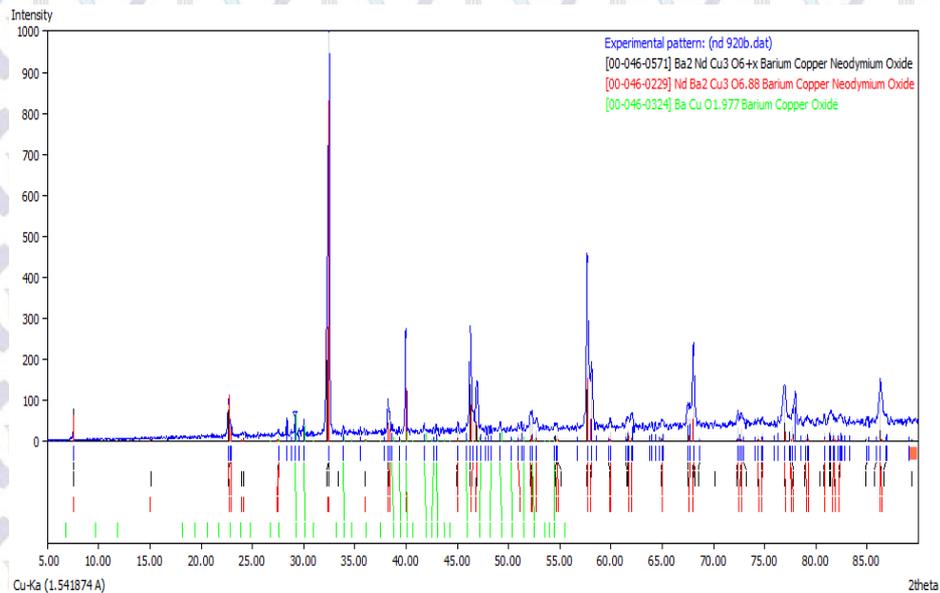
Y.Y. Chen, S.J. Jang, C.R. Wang, H.D. Yang (2005), *Superconductivity in CeCo<sub>2</sub> nanoparticles*, Physica B : Condensed Matter 359-361 : 497-499.

Y. Zhao, Q. R. Zhang (1990), Prog. Phys. 10 : 421.

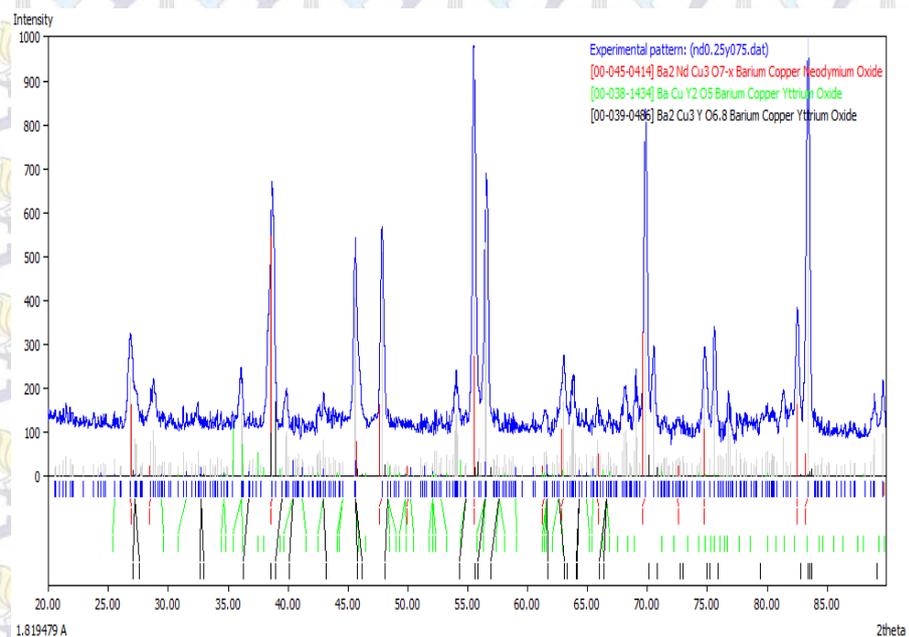
## Lampiran 1

### Contoh hasil pencocokan (*search match*) XRD, HRPD, SRD

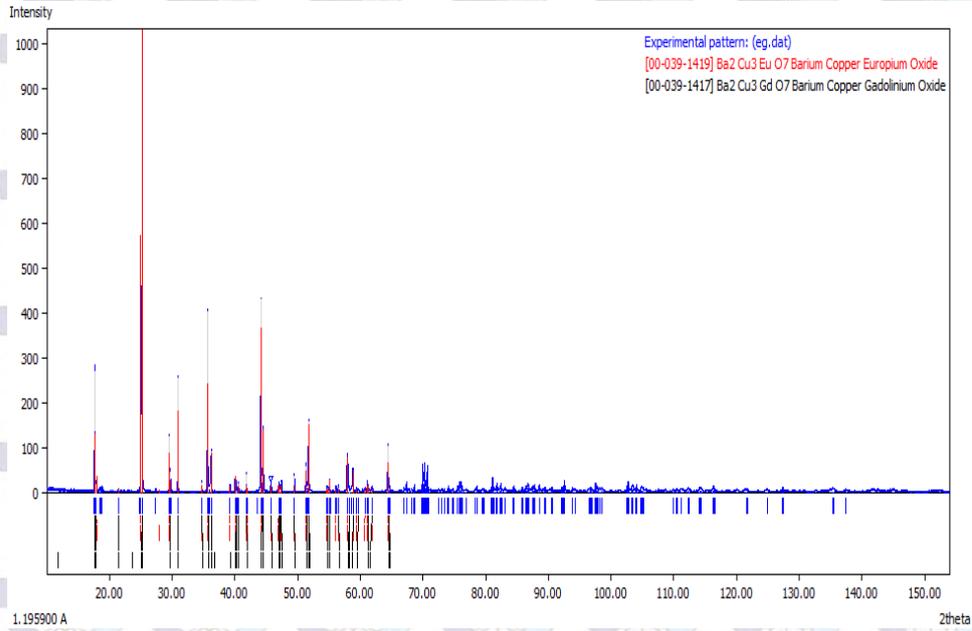
Hasil pencocokan (*search match*) karakterisasi XRD sampel  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $T_{\text{rc}}=920^\circ\text{C}$ ) menggunakan program *Match*.



Hasil pencocokan karakterisasi spectrum HRPD sampel  $\text{Nd}_{0.25}\text{Y}_{0.75}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dengan menggunakan program *Match*.



Hasil pencocokan karakterisasi spektrum SRD sampel  $\text{Eu}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  dengan menggunakan program *Match*.

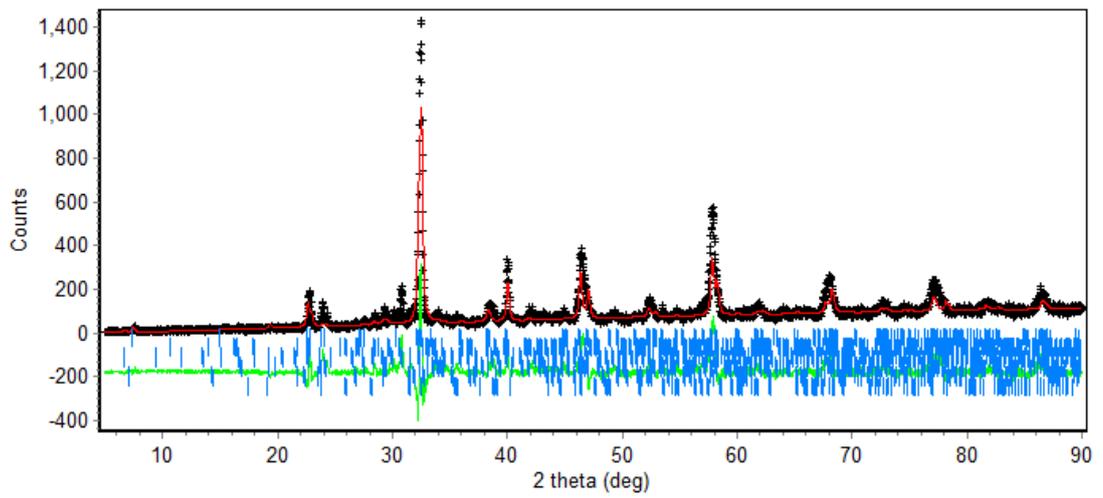


## Lampiran 2

### Contoh hasil *refinement* untuk fraksi berat

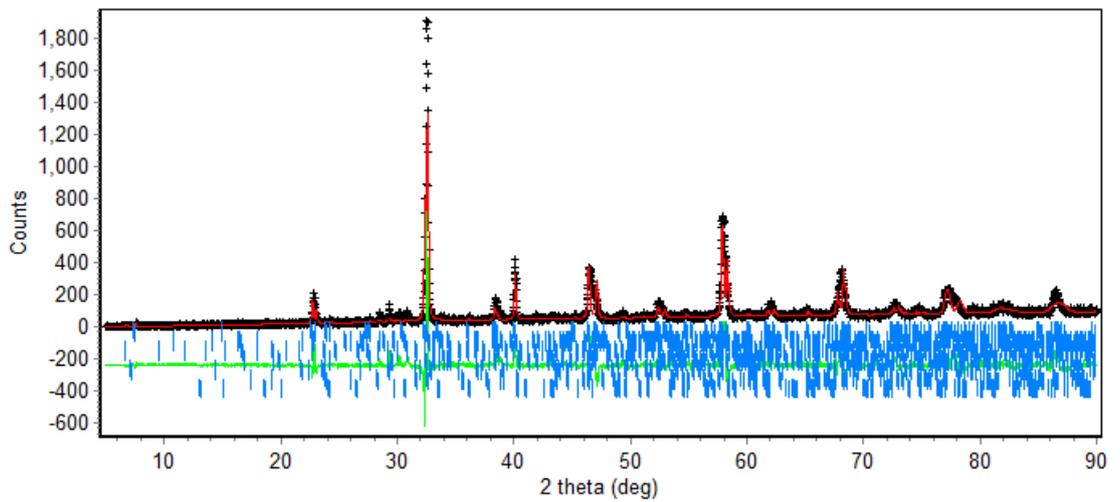
Sampel Nd-123 ( $T_{rc} = 800^{\circ}\text{C}$ )

Nd78453



Sampel Nd-123 ( $T_{rc} = 900^{\circ}\text{C}$ )

Nd78453

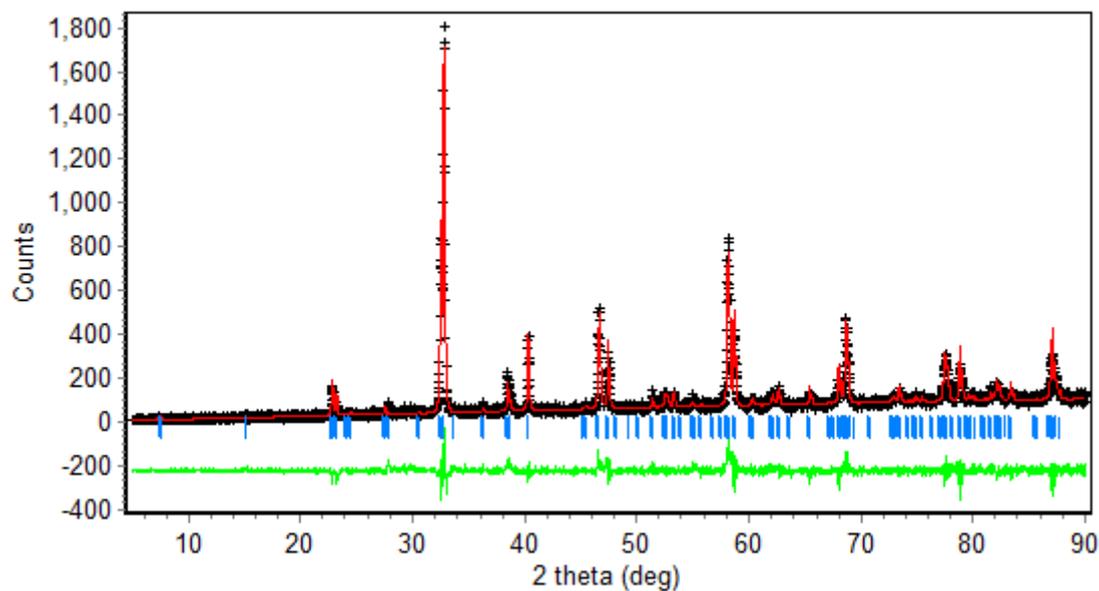


### Lampiran 3

#### Contoh hasil *refinement* untuk parameter kisi (XRD)

Data kristalografi hasil *refinement* karakterisasi XRD sampel  $\text{Nd}_{0,25}\text{Y}_{0,75}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-8}$

Atom	x	y	z	Posisi Wyckoff	Faktor hunian (g)	Atomic displacement parameter B ( $^{\circ}\text{A}^3$ )
Nd	0,5	0,5	0,5	1h	0,03125	0,6
Y	0,5	0,5	0,5	1h	0,09375	0,6
Ba	0,5	0,5	0,18335 (5)	2t	0,25	0,6
Cu (1)	0	0	0	1a	0,125	0,6
Cu (2)	0	0	0,34815 (1)	2q	0,25	0,6
O (1)	0	0	0,15316 (9)	2q	0,25	0,6
O (2)	0	0,5	0,37454 (6)	2r	0,25	0,6
O (3)	0,5	0	0,27889 (5)	2s	0,25	0,6
O (4)	0,5	0	0	1e	0,125	0,6



## DAFTAR RIWAYAT HIDUP



*Chiba University, Desember 2010*

1. Nama : Wayan Gede Suharta
2. NRP : 1107301202
3. NIP : 196506161992031002
4. Tempat/Tanggal lahir : Gianyar/16 Juni 1965
5. Program Studi : S3 Fisika
6. Pekerjaan : Dosen Fisika FMIPA Universitas Udayana
7. Alamat Kantor : Jurusan Fisika FMIPA UNUD Kampus Bukit  
Jimbaran Bali
8. Alamat Rumah : Jl. Nusa Indah 7, Br. Tarukan, Mas, Ubud,  
Gianyar, Bali
9. Tlp. Rumah/HP/email : 0361 974571 / 081337254282 /  
wgsuharta@gmail.com
10. Diterima di ITS : Semester genap 2007/2008

11. Riwayat Pendidikan : S1-Fisika, FMIPA Universitas Airlangga (UNAIR) Surabaya 1991  
S2-Fisika, FMIPA Institut Teknologi Bandung (ITB) 1997  
S3-Fisika, FMIPA Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS) 2007-sekarang

Dari kontribusi penelitian yang telah diuraikan di atas, beberapa hal telah diimplementasikan dalam penulisan jurnal nasional maupun internasional, proceeding, poster dan seminar internasional yaitu :

#### **Jurnal Internasional**

1. **W.G. Suharta**, H. Mugirahardjo, S. Pratapa, D. Darminto, S. Suasmoro, *X-ray and high-resolution neutron diffraction studies on  $Nd_xY_{1-x}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  superconductors*, J. Supercond. Nov. Magn., Vol. 26, Issue 11 (2013), p. 3209-3214.
2. **W.G. Suharta**, S. Pratapa, D. Darminto, S. Suasmoro, *Structural and superconducting aspects in  $REBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  ( $RE = Nd, Gd, Eu$ ) superconductors prepared by wet-mixing method and varying sintering temperature*, The 2nd International Conference on Theoretical and Applied Physics (ICTAP-2012), 19-20 2012.

#### **Jurnal Nasional**

1. I Made Hardiyasa, **W.G. Suharta**, Andika Fajar, D. Darminto, *Studi difraksi sinar-X dan neutron pada superkonduktor  $NdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$* , Jurnal Sains Materi Indonesia, Indonesian Journal of Materials Science, Edisi khusus Desember 2009, hal. 94-99.

#### **Seminar Nasional/Internasional**

1. **W.G. Suharta**, S. Pratapa, D. Darminto, S. Suasmoro, *Synthesis of  $NdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  superconductors using wet chemical method and varying*

sintering temperature, Presenter pada *International Symposium on Advanced Materials and Applications (ISAMA 2010)*, 6 Oktober 2010, ITS Surabaya.

2. **W. G. Suharta**, S. Pratapa, D. Darminto, S. Suasmoro, *Synthesis of  $Nd_{1-x}Y_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  oxide by wet-chemical method*, Presenter pada *International conference on physics and its applications (ICTAP 2011)*, 10-11 November 2011, ITB Bandung.
3. Eri Sri Palupi, **W.G. Suharta**, Andika Fajar, D. Darminto, *Crystal diffraction of  $GdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ,  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , and  $(Eu_{0.5}Gd_{0.5})Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  superconductors*, Poster pada *International Symposium on Advanced Materials and Applications (ISAMA 2010)*, 6 Oktober 2010, ITS Surabaya.
4. I Made Hardiyasa, **W.G. Suharta**, Andika Fajar, Darminto, *Crystal diffraction of  $NdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ,  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , and  $(Nd_{0.5}Gd_{0.5})Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  superconductors*, Poster pada *International Symposium on Advanced Materials and Applications (ISAMA 2010)*, 6 Oktober 2010, ITS Surabaya.