Pengaruh Penambahan Perak (Ag) terhadap Pembentukan Superkonduktor Y-247 (Y2Ba4Cu7O15- δ) dengan Metode Wet Mixing

Effect of Silver (Ag) Addition on the Forming Of Y-247 Superconductors (Y₂Ba₄Cu₇O_{15-δ}) using Wet Mixing Method

A. A. Made Wisnu Wijaya Putra, W. G. Suharta*, P. Suardana

Program Studi Fisika, Fakultas MIPA, Universitas Udayana, Kampus Bukit Jimbaran, Badung, Bali, Indonesia 80361

Email: <u>wisnu.wijaya@student.unud.ac.id;</u> *<u>wgsuharta@gmail.com</u>; <u>suardanaputu@unud.ac.id</u>

Abstrak – Telah diteliti mengenai pengaruh penambahan perak (Ag) pada pembentukan superkonduktor Y-247 (Y₂Ba₄Cu₇O_{15-δ}) dengan metode wet-mixing. Proses sintesis dilakukan dengan kalsinasi pada suhu 600 °C selama 3 jam dan sintering pada suhu 925 °C selama 10 jam. Variasi peningkatan penambahan Ag yang digunakan adalah Ag_{0,05}, Ag_{0,1}, Ag_{0,15} dan Ag_{0,2}. Karakterisasi X-Ray Diffraction (XRD), menunjukkan peningkatan penambahan Ag mengakibatkan menurunnya fraksi volume, dimana fraksi volume yang diperoleh berturut-turut adalah 55,0%, 51,3%, 50,9% dan 46,3%. Peningkatan penambahan Ag mengakibatkan meningkatnya nilai parameter kisi pada arah sumbu a yaitu 3,8247 Å, 3,8291 Å, 3,8292 Å, 3,8293 Å, menurunnya nilai parameter kisi pada arah sumbu b yaitu 3,8426 Å, 3,8415 Å, 3,8409 Å, 3,8383 Å dan menurunnya nilai parameter kisi pada arah sumbu c adalah 49,2174 Å, 49,2022 Å, 49,1881 Å, 49,1761 Å. Analisis hasil karakterisasi Scanning Electron Microscopy (SEM) meghasilkan ukuran partikel sebesar 225,47 nm, 202,88 nm, 190,68 nm dan 172,22 nm.

Kata kunci: Superkonduktor $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$, metode wet-mixing, penambahan perak (Ag), fraksi volume, parameter kisi, ukuran partikel.

Abstract – Superconductor Y-247 (Y₂Ba₄Cu₇O_{15-δ}) with adding silver (Ag) by using the wet-mixing method has been done. The synthesis process was carried out by calcination at 600° C for 3 hours and sintered at 925° C for 10 hours. Variations in the increase in the addition of Ag used were Ag_{0.05}, Ag_{0.1}, Ag_{0.15} and Ag_{0.2}. Characterization of X-Ray Diffraction (XRD), showed an increase in the addition of Ag resulting in a decrease in the volume fraction, where the volume fractions obtained consecutive were 55.0%, 51.3%, 50.9% and 46.3%. Increasing the addition of Ag results in an increase in the lattice parameter values in the direction of the a axis which is 3.8247 Å, 3.8291 Å, 3.8292 Å, 3.8293 Å, decreasing the lattice parameter values in the b axis direction which is 3.8426 Å, 3.8415 Å, 3.8409 Å, 3.8383 Å and decreasing the lattice parameter values in the direction of the c axis are 49.2174 Å, 49.2022 Å, 49.1881 Å, 49.1761 Å. Analysis of the results of the characterization of Scanning Electron Microscopy (SEM), the particle size obtained was 225.47 nm, 202.88 nm, 190.68 nm and 172.22 nm.

Key words: Superconductor $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$, wet-mixing method, addition of silver (Ag), volume fraction, lattice parameter, particle size.

1. Pendahuluan

Superkonduktor suhu tinggi (YBCO-123) dengan mengunakan doping sudah banyak dilakukan. Superkonduktor YBCO memiliki struktur kristal ortorombik, grup ruang Pmmm No.47 dengan kostanta kisi a = 3,886 Å, b = 3,825 Å dan c = 11,667 Å serta tersusun dari lapisan CuO, BaO, Y, CuO₂ dan BaO sepanjang sumbu-c [1]. Misalnya, pada penelitian yang dilakukan Yustinus P. dkk yaitu pembuatan komposit YBCO-123 dengan penambahan variasi Ag (0% - 50%) dari berat keseluruhan YBCO-123 memperlihatkan kenaikan Tc (87 – 92 K), rapat arus kritis Jc tertinggi 9,71 x 105 A/m2 pada penambahan Ag 35% [2]. Sisi negatifnya dari penambahan Ag adalah menghasilkan fasa non superkonduktor seperti BaCO₃, CuO, Y₂O₃, dan Y₂BaCuO₅ pada penambahan Ag 13%, 23% dan 50%. Penelitian serupa telah dilakukan oleh Alexey Pan dkk, yang menunjukkan adanya peningkatan Jc yang relatif rendah. Doping Ag yang digunakan pada YBCO ini adalah 12,5%, 6%, 2% dan 1,25%. Hasil yang didapat dari penelitian yang dilakukan oleh Alexey Pan dkk adalah doping Ag yang dilakukan pada bahan YBCO menunjukkan peningkatan Jc pada bidang yang relatif rendah [3].

Fasa lain dari sistem YBCO adalah YBCO-247 dengan Tc antara 40 dan 60 K. Metode *wet mixing* telah banyak dilakukan oleh peneliti sebelumnya, seperti yang telah dilakukan oleh W. G. Suharta mengenai

sintesis superkonduktor Nd₁Ba₂Cu₃O_{7- δ}, Nd_{0,5}Gd_{0,5}Ba₂Cu₃O_{7- δ}, Nd_{0,33}Eu_{0,33}Ba_{0,33}Cu₃O_{7- δ} [4] dan efek dari fluks B₂O₃ dalam pertumbuhan substitusi superkonduktor NLBCO [5]. Metode tersebut juga dilakukan oleh beberapa peneliti sebelumnya, yaitu dalam mensintesis senyawa (La_{1-x}Gd_x)Ba₂Cu₃O_{7- δ} pada suhu rendah [6], dalam penelitian pengaruh subtitusi Gd pada Ca dalam superkonduktor Bismuth fase 2212 [7] dan sintesis superkonduktor Sr_{1-x}Eu_xCu₁O_z [8]. Pada penelitian ini metode *wet mixing* digunakan dalam mensintesis superkonduktor Y₂Ba₄Cu₇O_{15- δ} dengan variasi penambahan Ag.

2. Eksperimen

Bahan yang digunakan pada penelitian ini yaitu Y2O3, BaCO3, CuO, AgNO3. Proses sintesis menggunakan metode wet mixing dengan menambahkan larutan HNO3 sebagai digest agent. Langkah-langkah dari proses sintesis superkonduktor Y2Ba4Cu7O15-δ dimulai dari penimbangan bahan, metode wet mixing, kalsinasi dan sintering ditunjukkan pada Gambar 1.



Gambar 1. Skema penelitian sintesis senyawa superkonduktor YBCO-247 dengan penambahan Ag.

Untuk mengetahui pengaruh variasi penambahan Ag terhadap struktur kristal, fraksi volume dan perubahan parameter kisi superkonduktor Y-247 ($Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$), sampel dikarakterisasi dengan XRD. Untuk mengetahui ukuran partikel dilakukan pengukuran menggunakan SEM. Sampel juga karakterisasi dengan FTIR.

3. Hasil Dan Pembahasan

Gambar 2 memperlihatkan pola difraksi XRD dari keempat sampel superkonduktor $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ dengan variasi penambahan $Ag_{0,05}$, $Ag_{0,1}$, $Ag_{0,15}$ dan $Ag_{0,2}$. Tampak bahwa, secara umum pola difraksi yang dihasilkan masing-masing sampel adalah hampir sama dengan intensitas puncak tertinggi teramati pada kisaran sudut $2\theta=32,64^{\circ}$. Dari ke-empat spectra pada Gambar 2 diperoleh bahwa intensitas puncak tertinggi 955 cps pada sudut $2\theta=32,66^{\circ}$ yang terdapat pada sampel $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ dengan $Ag_{0,05}$. Dari puncak terteinggi tersebut dapat teramati adanya pergeseran sudut 2θ , yaitu ke arah sudut yang lebih kecil dengan bertambahnya kandungan Ag.

Dari analisis puncak-puncak spectranya menggunakan program *Match! 3.4.2 Build 96*, selain puncak-puncak difraksi dari fase Y₂Ba₄Cu₇O_{15-δ} (pada Gambar 2 ditandai dengan segi empat) teramati adanya puncak puncak yang berasal dari difraksi impuritas seperti BaCuO₃, AgNO₃ dan CuO. Nilai fraksi volume sampel terhadap penambahan Ag seperti ditunjukkan pada Gambar 3. Tampak bahwa fraksi volume menurun seiring dengan peningkatan penambahan Ag. Ini memberikan indikasi bahwa semakin besar penambahan Ag semakin besar fasa impuritasnya.



Gambar 2. Pola XRD superkonduktor $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,05}), $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,1}), $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,15}) dan $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,2}).



Gambar 3. Grafik perubahan fraksi volume terhadap penambahan $Ag_{0,05}$, $Ag_{0,1}$, $Ag_{0,15}$ dan $Ag_{0,2}$ pada sampel superkonduktor $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$.

Hasil *refinement* dengan mengunakan program *Rietica* seperti ditunjukkan pada Tabel 1. Perubahan struktur kisi kristal pada sampel senyawa $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ hasil sintesis dapat dilihat dari perubahan nilai parameter kisinya seperti ditunjukan pada Gambar 4. Tampak bahwa nilai parameter kisi *a* cenderung bertambah besar dengan bertambahnya Ag. Sedangkan nilai parameter kisi *b* dan *c* mengalami penurunan. Berdasarkan hasil nilai parameter kisi dari masing-masing sampel terindikasi bahwa semua sampel mempuyai struktur kristal orthorombik.

Tabal 1 D

Table 1. Parameter kist superkonduktor 12ba4Cu/O ₁₅₋₆ .													
No.	Sampel		R										
		a (Å)	b (Å)	c (Å)	R _p	R_{wp}	R _{exp}						
1	$Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}(Ag_{0,05})$	3,8247(5)	3,8426(6)	49,2174(5)	14,93	19,77	9,66						
2	$Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}(Ag_{0,1})$	3,8291(8)	3,8415(7)	49,2022(6)	15,58	20,65	9,57						
3	$Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}(Ag_{0,15})$	3,8292(9)	3,8409(1)	49,1881(1)	14,36	19,04	10,09						
4	$Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}(Ag_{0,2})$	3,8293(3)	3,8383(1)	49,1761(1)	15,84	21,06	8,80						

on line annonlion duliton V Do



Gambar 4. (a) Perubahan nilai parameter kisi a dan parameter kisi b terhadap terhadap doping Ag_{0,05}, Ag_{0,1}, Ag_{0,15} dan Ag_{0,2} pada sampel superkonduktor Y₂Ba₄Cu₇O_{15- δ}, (b) perubahan nilai parameter kisi c terhadap terhadap doping Ag_{0,05}, Ag_{0,1}, Ag_{0,15} dan Ag_{0,2} pada sampel superkonduktor Y₂Ba₄Cu₇O_{15- δ}.

Hasil karakterisasi menggunakan SEM diperlihatkan pada Gambar 5, sementara hasil analisis dengan *Image-J* dan *OriginPro 2016* diperlihatkan pada Gambar 6. Dari Gambar 6 dapat teramati bahwa nilai ukuran partikel rata-rata pada sampel superkonduktor $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,05}), $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,1}), $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,15}) dan $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,2}) secara berturut-turut adalah sebesar 225,47 nm, 202,88 nm, 190,68 nm dan 172,22 nm.



Gambar 5. Hasil karakterisasi SEM superkonduktor (a) $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,05}), (b) $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,1}), (c) $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,15}) dan (d) $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,2}).

Hasil karakterisasi menggunakan FTIR pada rentang bilangan gelombang 400 cm⁻¹ – 4000 cm⁻¹ dari sampel superkonduktor Y₂Ba₄Cu₇O_{15- δ}(Ag_{0.05}), Y₂Ba₄Cu₇O_{15- δ}(Ag_{0.1}), Y₂Ba₄Cu₇O_{15- δ}(Ag_{0.15}) dan Y₂Ba₄Cu₇O_{15- δ}(Ag_{0.2}) ditunjukkan pada Gambar 7. Dari gambar tersebut dapat teramati bahwa kempat sampel memperlihatkan pola spectra transmitansi yang serupa. Pada daerah gugus fungsional pada bilangan gelombang antara 1350 – 4000 cm⁻¹ dapat teramati adanya pita-pita lemah pada kisaran bilangan gelombang 3554, 3320, 3000 m⁻¹ dan pita kuat pada 1435 m⁻¹. Sesuai dengan referensi 9 (Zhao dkk, 2004), secara umum spectrum FTIR dapat diklasifikasikan menjadi tiga daerah, yaitu (1) gugus fungsional 3500 - 3000 cm⁻¹ seperti *stertch* -OH yang memberikan absorbs pada bilangan gelombang 3450 - 3280 cm⁻¹ dan *stertch* -CH₂-pada rentang 3100 - 2750 cm⁻¹; (2) gugus fungsional antara 1650 - 1300 cm⁻¹ seperti pita absorbsi karena *stertch* -COOH dari grup karboksilat yang dapat diidentifikasi pada rentang antara 1700 - 1550 cm⁻¹, 1350 - 1340 cm⁻¹, dan 950 - 800 cm⁻¹; (3) daerah sidik jari (*fingerprint*) pada daerah <1350 cm⁻¹.



Gambar 6. Distribusi ukuran partikel superkonduktor (a) $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,05}), (b) $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,1}), (c) $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,15}) dan (d) $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,2}).



Gambar 7. Pola spektra FTIR dari sampel, dari bawah ke atas masing-masing $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}(Ag_{0,05})$, $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}(Ag_{0,15})$, $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}(Ag_{0,15})$ dan $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}(Ag_{0,25})$.

Pada kasus superkonduktor YBCO sesuai dengan referensi 10 (Piro, dkk., 1989) [10] pada daerah bilangan gelombang sekitar 400 cm⁻¹ adalah aktif-IR dari fonon yang melibatkan vibrasi dari ion-ion logam, Cu(2)-O(2,3) dan modus *bend* Cu(1)-O(4)-Cu(2). Pada daerah di sekitar 600 adalah berhubungan dengan modus *stretch* Cu-O(2,3) pada lapisan CuO₂ dan modus *stretch* Cu-O(4)-Cu pada oksigin epiks (jembatan) O(4). Secara teoritis pada superkonduktor fase YBa₂Cu₃O₇₋₈ terdapat 36 modus vibrasi yang mungkin, pada rentang bilangan gelombang 400 cm⁻¹ – 600 cm⁻¹ adalah: 411, 416, 417, 428, 447, 490, 509, 531 (540), 545, 546, 565, 573, 584, 588 cm⁻¹ [11].

Sementara itu, spectra FTIR pada rentang bilangan gelombang antara $400 - 1500 \text{ m}^{-1}$ pada penelitian ini seperti diperlihatkan pada Gambar 8. Posisi puncak-puncak dari pita-pita transmitansinya yaitu v diberikan pada Tabel 2. Pita melebar dengan puncak v8=1435 nm⁻¹ kemungkinan berasal dari vibrasi karbonat yang terikat pada ion Ba [12]. Bila dibandingkan dengan modus vibrasi yang diberikan oleh referensi 11 tampak ada sejumlah nilai v yang hampir sama, yaitu nilai v1 dan v2 pada bilangan gelombang antara 411 – 447 cm⁻¹, v3 dan v4 antara 503 – 532 cm⁻¹, v5 pada 594 cm⁻¹. Ini mengindikasikan adanya vibrasi dari Cu-O pada bilang (lapisan) CuO₂ yang mana mengkarakterisasi dari superkonduktor berbasis cuprat YBCO.



Gambar 8. Spektrum FTIR superkonduktor $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,05}), $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,1}), $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,1}), $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,1}), $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ (Ag_{0,2}) pada bilangan elombang 350 – 1500 m⁻¹.

Sampal	Bilangan gelombang v (m ⁻¹)								
Samper	v1	v2	v3	v4	v5	vб	v7	v8	
$Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}(Ag_{0,05})$	421	444	513	529	594	695	855	1435	
$Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}(Ag_{0,1})$	421	444	513	529	594	695	855	1435	
Y2Ba4Cu7O15-8 (Ag0,15)	413	444	-	527	594	698	858	1435	
$Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}(Ag_{0,2})$	416	428	503	532	594	698	856	1435	

Tabel 2. Posisi puncak dari pita transmitasi v dari Gambar 8.

4. Kesimpulan

Penambahan Ag dari 0,05 sampai 0,20 pada superkonduktor $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ mengakibatkan penurunan nilai fraksi volume. Penambahan Ag (0,05 – 0,20) mengakibatkan perubahan struktur kisi dari $Y_2Ba_4Cu_7O_{15-\delta}$ yang ditunjukkan oleh perubahan parameter kisinya, yaitu peningkatan paremeter kisi *a* (3,8247 Å - 3,8293 Å) dan penurunan parameter kisi *b* (3,8426 Å - 3,8383 Å) dan *c* (49,2174 Å - 49,1761 Å). Dari analisis SEM diperoleh ukuran partikel secara rata-rata menurun secara signifikan dengan bertambahnya Ag (225,47 nm - 172,22 nm).

Pustaka

[1] Putro, A. P., Sintesis Superkonduktor YBCO dengan Metode Evaporasi dan Karakterisasinya, *Skripsi*, Institut Pertanian Bogor, Bogor, 2010.

- [2] Yustinus, P., Gunawan, I., Wuryanto, Pembuatan Komposit YBCO-123/Ag Melalui Pelarut Garam Cair Urea, *Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah PPNY-BATAN*, Yogyakarta, Vol. 2, 1996, pp. 85-88.
- [3] Alexey, Pan., Pysarenko, V., Wexler, D., Rubanov, S., Dou, S.X., Multilayering and Ag-Doping for Properties and Performance Enhancement in YBa₂Cu₃O₇ Films, *IEEE Transactions On Applied Superconductivity*, Vol. 17, 2007.
- [4] Suharta, W.G., H. Mugirahardjo, S. Pratapa, D. Darminto, S. Suasmoro, X-Ray and High-Resolution Neutron Diffraction Studies on Nd_xY_{1-x}Ba₂Cu₃O_{7-δ} Superconductors, *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism: Incorporating Novel Magnetism*, Springer, Vol. 26, 2013.
- [5] Suharta, W. G., N. Wendri, N., Ratini, K. N., Suarbawa, The Effect of B₂O₃ Flux on Growth NLBCO Superconductor by Solid State Reaction and Wet-Mixing Methods, *The 4th International Conference on Theoretical and Applied Physics (ICTAP) 2014*, American Institute of Physics, 2016.
- [6] Sumadiyasa, M., Putra Adnyana, I G. A., Widagda, I G. A., Suharta, W G., Study synthesis of (La_{1-x}Gd_x)Ba₂Cu₃O_{7-δ} superconductors at low temperature, *Journal of Physics: Conference Series*, Vol. 725, 2016.
- [7] Paramarta, Iba., Ratnawati, Igaa., Putra, IK., Suharta, W.G., Influence Of Substitution Of Gd On Ca Elements In Phase 2212 Superconductor: Bi₂Sr₂(Gd_xCa_{1-x})Cu₂O_z, *International Journal Of Scientific Research*, Vol. 7, 2018.
- [8] Suardana, P., Suarbawa, K.N., Sutapa, G.N., Suharta, W.G., Synthesis Of Strontium Copper Oxide With Substitution Of Rare Earth Elements, *International Journal Of Scientific Research*, Vol. 7, 2018.
- [9] Zhao, Y. E., Cai, C. Y., Luo, Y. Y., and He1, Z. H., *FTIR Spectra of the M(EDTA)ⁿ⁻ Complexes in the Process of Sol-Gel Technique*, Plenum Publishing Corporation, pp. 383 387, 2004.
- [10] Oscar E. Piro, Jorge Guida, Nestor E. Massa, Inrared reflectivity and vabritional structur of superconducting Bi₂Sr₂Ca₁Cu₂O_{8+x}, *Phys. Rev.*, vol. 39, 1989, pp. 7255 7258.
- [11] C. Thomsen and G. Kaczmarczyk, Vibrational Raman Spectroscopy of High-temperature Superconductors, In: John M. Chalmers and Peter R. Griffiths, Editors, Handbook of Vibrational Spectroscopy, John Wiley & Sons Ltd, Chichester, 2002, pp. 1 – 19.
- [12] Annapura Mohanta, Dhrubananda Bahera, Shimanchalo Panigrahi and Naresh Chandra Mishra, Intergranular percolation in granular YBCO/BaTiO₃ composites, *Indian J. Phys.* Vol. 83 (4), 2009, pp 455-463.