



# Variasi tekanan oksigen dalam penumbuhan kristal tunggal superkonduktor $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ dan pengaruhnya

Darminto<sup>1,2</sup>, A.A. Nugroho<sup>1,3</sup>, A. Rusydi<sup>1</sup>, A.A. Menovsky<sup>3</sup>, dan W. Loeksmanto<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Jurusan Fisika ITB, Jl. Ganesa 10, Bandung 40132, Telp. (022) 2512672, Fax. (022) 2506452.

<sup>2</sup> Jurusan Fisika FMIPA ITS, Sukolilo, Surabaya 60111.

<sup>3</sup> Van der Waals-Zeeman Institute, University of Amsterdam, Valckenierstraat 65, 1018XE Amsterdam, The Netherlands

Masuk: 26 Agustus 1999; revisi masuk: 23 Februari 2000; diterima: 9 Maret 2000

## Sari

Dalam tulisan ini disajikan hasil pembuatan kristal tunggal bahan superkonduktor  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  dengan metode *travelling solvent floating zone* (TSFZ) dalam atmosfer yang bervariasi, yaitu dalam udara dan dalam oksigen ( $\text{O}_2$ ) 1 bar dan 2,5 bar. Variasi kadar oksigen yang terjadi dalam kristal sebagai akibat variasi atmosfer telah menyebabkan perbedaan komposisi molar dalam kristal yang terbentuk dan pembentukan fasa takmurnian. Hasil karakterisasi menunjukkan bahwa meningkatnya kadar oksigen dalam kristal yang bersangkutan menurunkan suhu kritis ( $T_c$ ) dan parameter anisotropi ( $\gamma$ ). Penurunan anisotropi selanjutnya memperbesar medan puncak kedua ( $H_{2p}$ ) dan menggeser garis takreversibel ( $H_{irr}$ ) ke arah suhu dan medan magnet yang lebih tinggi dalam diagram fasa H-T, yang menunjukkan peningkatan efek *pinning* vorteks sebagai akibat peningkatan kadar dopan oksigen.

**Kata kunci:** kristal tunggal, superkonduktor, doping oksigen, anisotropi, sifat magnetik, efek *pinning*.

## Abstract

### Variation of oxygen pressure in growing $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ single crystal superconductors and its effects

This paper presents the results of growing  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  single crystal superconductors by means of travelling solvent floating zone (TSFZ) method in various atmospheres, namely in air and in oxygen ( $\text{O}_2$ ) of 1 and 2.5 bar. Variations of oxygen contents due to different atmospheres in the growing process lead to a variety of molar compositions of the as-grown crystals as well as formation of impurity phases. It is found from the result of sample characterization that the increase of oxygen content in the crystal lowers its critical temperature ( $T_c$ ) and anisotropy ( $\gamma$ ). Further the lowering of anisotropy increases the second peak field ( $H_{2p}$ ) and causes a shift of the irreversibility line ( $H_{irr}$ ) to the higher temperature and magnetic field in the H-T phase diagram, signifying the enhancement of vortex pinning effect due to increasing concentration of oxygen dopant.

**Keywords:** single crystal, superconductors, oxygen doping, anisotropy, magnetic properties, pinning effect.

## 1 Pendahuluan

Bahan superkonduktor suhu kritis tinggi (SKST) umumnya mempunyai struktur yang berlapis sehingga bersifat anisotropis. Kajian sifat fisis intrinsik dari bahan yang anisotropis memerlukan sampel kristal tunggal yang "bersih", bebas dari cacat struktur, fasa takmurnian, dan efek batas butir. Karena itu, sintesis dan penumbuhan kristal senyawa SKST telah dilakukan secara intensif di berbagai laboratorium negara maju sejak tahun 1987. Sintesis sampel kristalin Bi-Sr-Ca-Cu-O (BSCCO) dalam bentuk *bulk* sejauh ini lebih banyak ditempuh melalui metode pendinginan lambat dan digunakannya "pelarut" pada suhu tinggi (*flux*), baik berupa *self-flux* [1,2] maupun NaCl [3] dan KCl [4-6]. Sampel yang dihasilkan melalui metode tersebut umumnya berupa polikristal atau

mikrokristal dengan butiran yang berukuran puluhan hingga ratusan mikrometer dan berbentuk lempengan tipis, yang disertai oleh sejumlah fasa impuritas [7]. Di pihak lain, penumbuhan kristal dengan metode *travelling solvent floating zone* (TSFZ) dapat menghasilkan kristal yang berukuran lebih besar dan relatif lebih bersih dari pada fasa takmurnian [8]. Dengan menggunakan metode ini dapat pula diperoleh sampel kristal tunggal yang diberi dopan tertentu untuk mempengaruhi derajat ketertiban (*order*) dan isotropi dari kristal bersangkutan. Dengan demikian dapat dikaji efek derajat ketertiban dan isotropi pada sifat magnetik bahan, yang sejauh ini belum selesai dikaji secara tuntas.

Untuk memastikan kajian tersebut di atas telah dilakukan eksperimen penumbuhan kristal bahan superkonduktor

$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8-\delta}$  (BSCCO-2212) dengan menggunakan metode TSFZ untuk memperoleh sampel dengan kadar oksigen yang bervariasi. Berbeda dengan teknik penumbuhan kristal BSCCO-2212 pada umumnya yang memisahkan proses pengaturan kadar oksigen dari proses penumbuhannya, maka dalam eksperimen sintesis ini kandungan oksigen ( $\delta$ ) dalam senyawa dikendalikan sekaligus dalam proses penumbuhannya dengan mengatur tekanan oksigen dalam ruang pertumbuhan kristal. Dengan teknik ini, kadar oksigen kristal yang dihasilkan dapat diatur tanpa perlakuan tambahan setelah terbentuknya kristal (penganilan akhir), dan sampel yang dihasilkan dapat terhindar dari kemungkinan kerusakan yang terjadi pada permukaan kristal. Selanjutnya, untuk mengkaji efek variasi atmosfer dalam proses penumbuhan tersebut telah dilakukan karakterisasi kristal BSCCO-2212 melalui pengukuran dan analisis difraktogram XRD, kurva transisi resistif  $\rho(T)$ , serta kurva histerisisnya (M-H). Hasilnya dibandingkan dengan kristal serupa yang ditumbuhkan melalui cara "standar" dalam udara dengan penganilan akhir.

## 2 Metode eksperimen

Untuk penumbuhan kristal tunggal dalam eksperimen ini digunakan metode TSFZ yang dilengkapi pengendalian tekanan parsial oksigen. Bahan umpan (*feed*) dan pelarut untuk penumbuhan kristal tunggal masing-masing berkomposisi awal  $\text{Bi}_{2,05}\text{Sr}_{1,95}\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_x$  dan  $\text{Bi}_{2,6}\text{Sr}_{1,9}\text{CaCu}_3,6\text{O}_y$ . Bahan dasar yang berbentuk senyawa oksida ( $\text{Bi}_2\text{O}_3$ ), karbonat ( $\text{SrCO}_3$ ,  $\text{CaCO}_3$ ), dan logam murni (Cu) dicampurkan secara basah dengan menggunakan  $\text{HNO}_3$  (65%). Proses kalsinasi pada campuran bahan serbuk yang telah dikeringkan dilakukan pada suhu  $810^\circ\text{C}$  selama 20 jam. Serbuk bahan umpan dimasukkan ke dalam selubung karet dan dicetak menjadi batang silinder berukuran garis tengah 6-8 mm dan panjang 8-10 cm dengan tekanan hidrostatik mencapai 3 kbar. Proses penyinteran dilakukan dalam tungku tabung (*tubular furnace*) pada suhu  $840^\circ\text{C}$  selama 40 jam, dengan batang umpan yang digantung dan digerakkan secara vertikal sambil berputar perlahan (30 rpm), agar pemanasan berlangsung merata. Sementara itu, serbuk bahan pelarut dalam bentuk pelat silinder tipis bergaris tengah 8 mm dan tebal 2 mm disiapkan dengan penyinteran pada suhu  $840^\circ\text{C}$  selama 40 jam.

Proses penumbuhan kristal berlangsung dalam *optical floating zone furnace* buatan Crystal Systems Inc., yang dilengkapi dengan 4 buah cermin elipsoidal dan 4 buah lampu halogen masing-masing dengan daya 350 W. Bahan umpan, benih (*seed*) dan pelarut diletakkan dalam tabung kuarsa dengan susunan vertikal. Tepatnya, lempengan bahan pelarut (< 0,5 gram) diletakkan di atas benih dan batang umpan menggantung di atasnya. Sebagai benih digunakan kristal tunggal BSCCO-2212 sepanjang 1 cm. Bahan benih dan batang umpan masing-

masing diputar 30 rpm dan 28 rpm dalam arah yang berlawanan. Laju pertumbuhan kristal yang dicapai dalam proses ini adalah 0,25 mm/jam. Selama proses penumbuhan berlangsung, pengaturan daya lampu berkisar sekitar 120-150 W. Untuk meningkatkan rapat massa bahan umpan agar menghasilkan zona cair yang stabil selama proses penumbuhan kristal, terlebih dahulu batang umpan diberi perlakuan *fast-scanning* (penumbuhan kristal dengan laju tinggi dan tanpa bahan pelarut) pada suhu lelehnya dengan laju 60mm/jam.

Untuk mengatur kandungan oksigen kristal, penumbuhan dilakukan dalam atmosfer yang bervariasi, yaitu dalam udara ( $\text{O}_2$  0,2 bar), dan dalam gas oksigen ( $\text{O}_2$ ) bertekanan 1 dan 2,5 bar. Kestabilan proses pertumbuhan yang terbaik dicapai dalam eksperimen dengan lingkungan udara, dan kestabilan menurun dengan bertambahnya kadar oksigen yang digunakan. Untuk selanjutnya, kristal yang ditumbuhkannya berturut-turut diberi simbol B-02, B-10 dan B-25 sesuai dengan tekanan oksigen.

Komposisi akhir kristal yang diperoleh diukur dengan spektrometri ICP (*inductively-coupled plasma*), sedangkan kekristalannya diukur dengan difraktometer sinar-X (XRD) dan kamera Laue. Untuk pengukuran resistivitas, kristal dipotong menurut ukuran  $4 \times 1 \times 0,1 \text{ mm}^3$  dan diberi pasta emas sebagai kontak listriknya. Resistivitas sebagai fungsi suhu,  $\rho(T)$ , diukur dengan menggunakan perangkat pengukuran yang dilengkapi sistem pendingin CTI-Cryogenic yang dapat menjangkau suhu terendah 10 K. Pengukuran kurva histerisis (M-H) dilakukan pada sampel berukuran  $1,5 \times 1 \times 0,1 \text{ mm}^3$  dengan magnetometer SQUID Quantum Design MPMS-5. Dalam eksperimen pengukuran ini, medan magnet diarahkan sejajar sumbu *c* kristal.

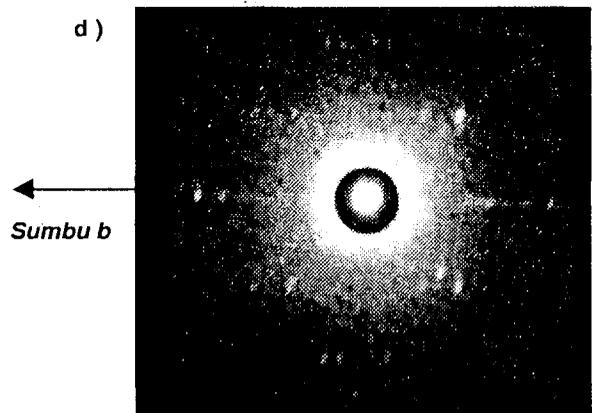
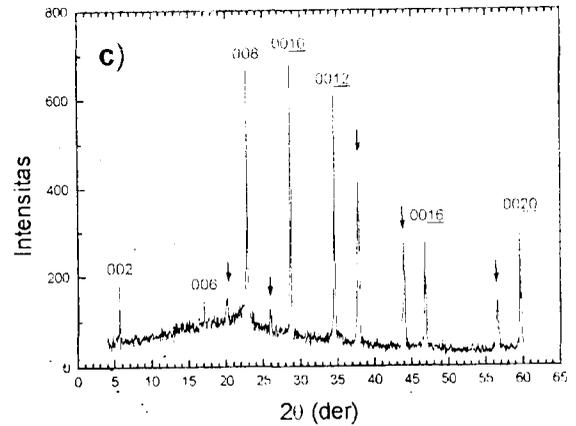
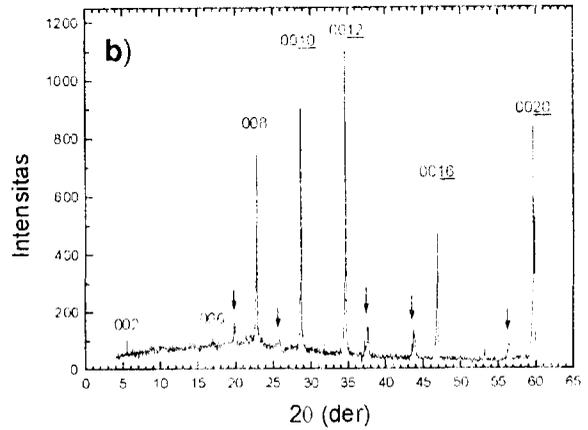
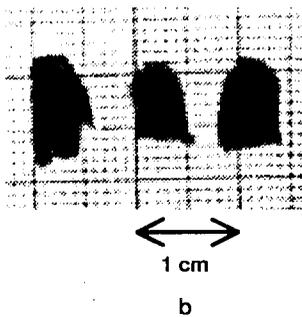
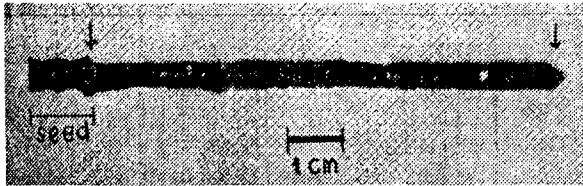
## 3 Hasil dan pembahasan

Salah satu batang kristal yang telah ditumbuhkan (B-02) dan sampel yang diperoleh dari sayatan (*cleaving*) ditunjukkan dalam Gambar 1. Dari pengamatan menggunakan mikroskop terpolarisasi (*polarized microscope*), diperoleh kristal dengan butiran tunggal (*single grain*) maksimum berukuran  $10 \times 5 \times 0,5 \text{ mm}^3$ . Sumbu *c* kristal berarah tegak lurus pada bidang lempeng kristal (tegak lurus bidang kertas pada Gambar 1b).

Hasil analisis komposisi kristal dengan spektrometri ICP menunjukkan bahwa kandungan kation dalam masing-masing kristal cukup bervariasi, meskipun digunakan kristal benih, komposisi awal bahan umpan, dan pelarut yang sama. Dapat dilihat pada Tabel 1 bahwa kadar kation Sr menunjukkan variasi yang paling menonjol (~7,5%) di antara ketiga kristal daripada variasi kation lainnya (<2%). Kadar kation Sr tampak paling rendah pada kristal B-10.

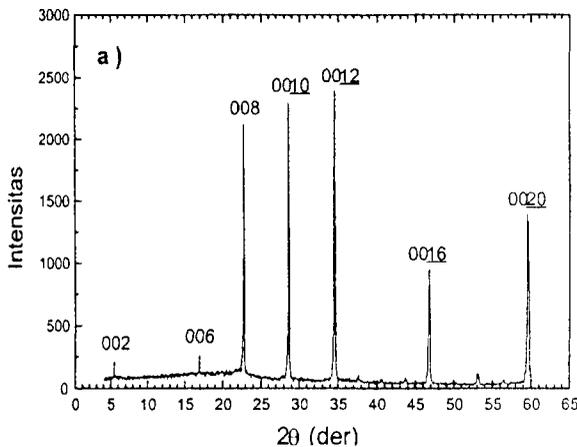
**Tabel 1** Komposisi kation dan tetapan kisi berstruktur tetragonal dari kristal yang ditumbuhkan.

Kristal	Atmosfer	Komposisi kation	Tetapan kisi <i>a</i> (Å)	Tetapan kisi <i>c</i> (Å)
B-02	Udara	Bi <sub>2,16</sub> Sr <sub>2,06</sub> Ca <sub>0,98</sub> Cu <sub>2</sub>	5,47 ± 0,01	30,92 ± 0,01
B-10	O <sub>2</sub> 1 bar	Bi <sub>2,12</sub> Sr <sub>1,88</sub> Ca <sub>0,99</sub> Cu <sub>2</sub>	5,46 ± 0,01	30,85 ± 0,03
B-25	O <sub>2</sub> 2,5 bar	Bi <sub>2,13</sub> Sr <sub>1,97</sub> Ca <sub>1,00</sub> Cu <sub>2</sub>	5,47 ± 0,01	30,97 ± 0,02



**Gambar 1** a. Batang Kristal B-02 hasil penumbuhan dengan TSFZ, tanda panah menunjukkan awal (kiri) dan akhir (kanan) pertumbuhan kristal, b). Kristal setelah dipotong dan disayat dari batang. Setiap serpih kristal mengandung beberapa butiran tunggal.

Berdasarkan analisis struktur kristal pada difraktogram XRD dalam Gambar 2a-c didapat hasil bahwa tetapan kisi *c* untuk kristal B-10 bernilai paling kecil, bersesuaian dengan kadar Sr dalam kristal ini. Ini berarti bahwa kekosongan titik kisi yang seharusnya ditempati atom Sr telah memperpendek ukuran kisinya. Di pihak lain, meskipun kandungan Sr lebih kecil, tetapan kisi *c* pada kristal B-25 lebih besar daripada kristal B-02. Penyimpangan ini disebabkan oleh faktor kadar oksigen yang lebih tinggi. Atom O yang jumlahnya lebih banyak pada kristal B-25 diduga menempati titik-titik di



**Gambar 2** Spektrum XRD untuk kristal : a) B-02, b) B-10, c) B-25. d) Pola hamburan balik Laue dari kristal B-02. Penjelasan diberikan dalam teks.

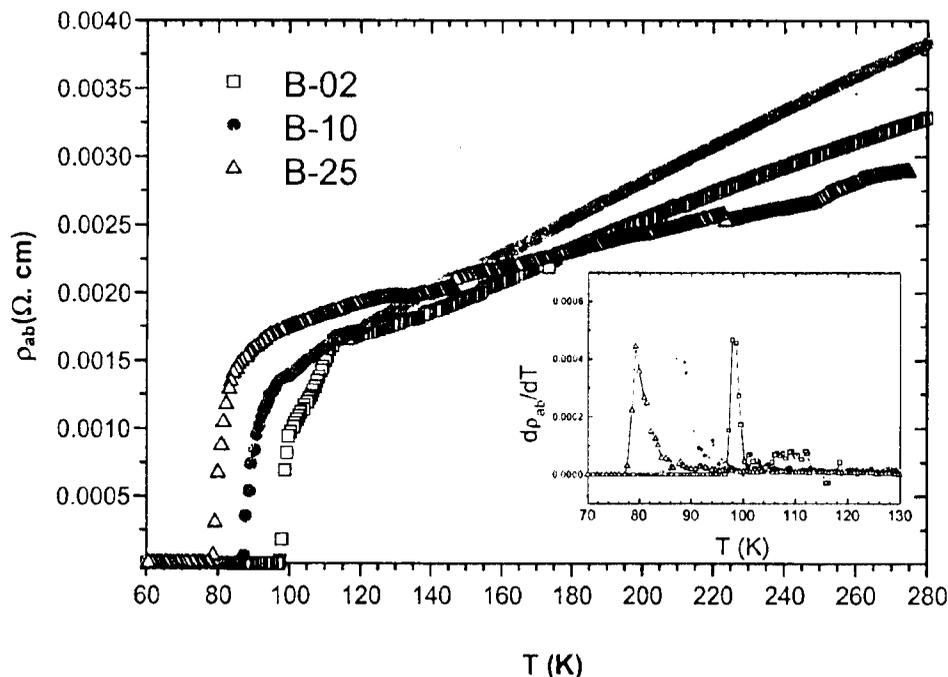
sepanjang rusuk kisi, yang memperbesar tetapan kisi dalam arah  $c$ . Dalam uraian selanjutnya akan dibahas kandungan oksigen pada kristal-kristal yang bersangkutan meskipun nilai kuantitatifnya tidak dapat ditentukan dalam eksperimen ini.

Berdasarkan difraktogram XRD yang ditunjukkan oleh Gambar 2a-c, umumnya puncak difraksi muncul sangat tajam dan hanya bersesuaian untuk bidang kristal yang berindeks  $00\ell$  ( $\ell = \text{genap}$ ) bagi senyawa BSCCO-2212. Selain menunjukkan bahwa sumbu  $c$  kristal berarah tegak lurus bidang sampel, difraktogram XRD tersebut mengungkapkan bahwa kekristalan dalam sampel cukup tinggi. Pada Gambar 1a terlihat bahwa kristal B-02 cukup bersih dari fasa takmurnian, dan bila puncak lain yang jauh lebih kecil intensitasnya diperhitungkan, maka kehadiran takmurnian tersebut kurang dari 1%. Berbeda dengan kristal B-02, dan seiring dengan peningkatan kadar oksigen dalam proses penumbuhannya, terlihat adanya pertumbuhan fasa takmurnian dalam kristal B-10 dan B-25, sebagaimana ditunjukkan oleh kehadiran puncak difraksi (tanda panah) baru dalam Gambar 2b dan 2c. Kehadiran fasa takmurnian tersebut mencapai 5,5% dan 20% berturut-turut untuk kristal B-10 dan B-25. Tampak pula dari data ini bahwa fase takmurnian sejenis mengalami peningkatan berarti pada sampel B-25 yang ditumbuhkan dalam oksigen bertekanan 2,5 kali dari tekanan pada sampel B-10. Sejauh ini, jenis senyawa takmurnian yang bersangkutan belum dapat ditentukan, karena teknik penumbuhan kristal dalam atmosfer oksigen belum banyak dilaporkan. Meskipun demikian,

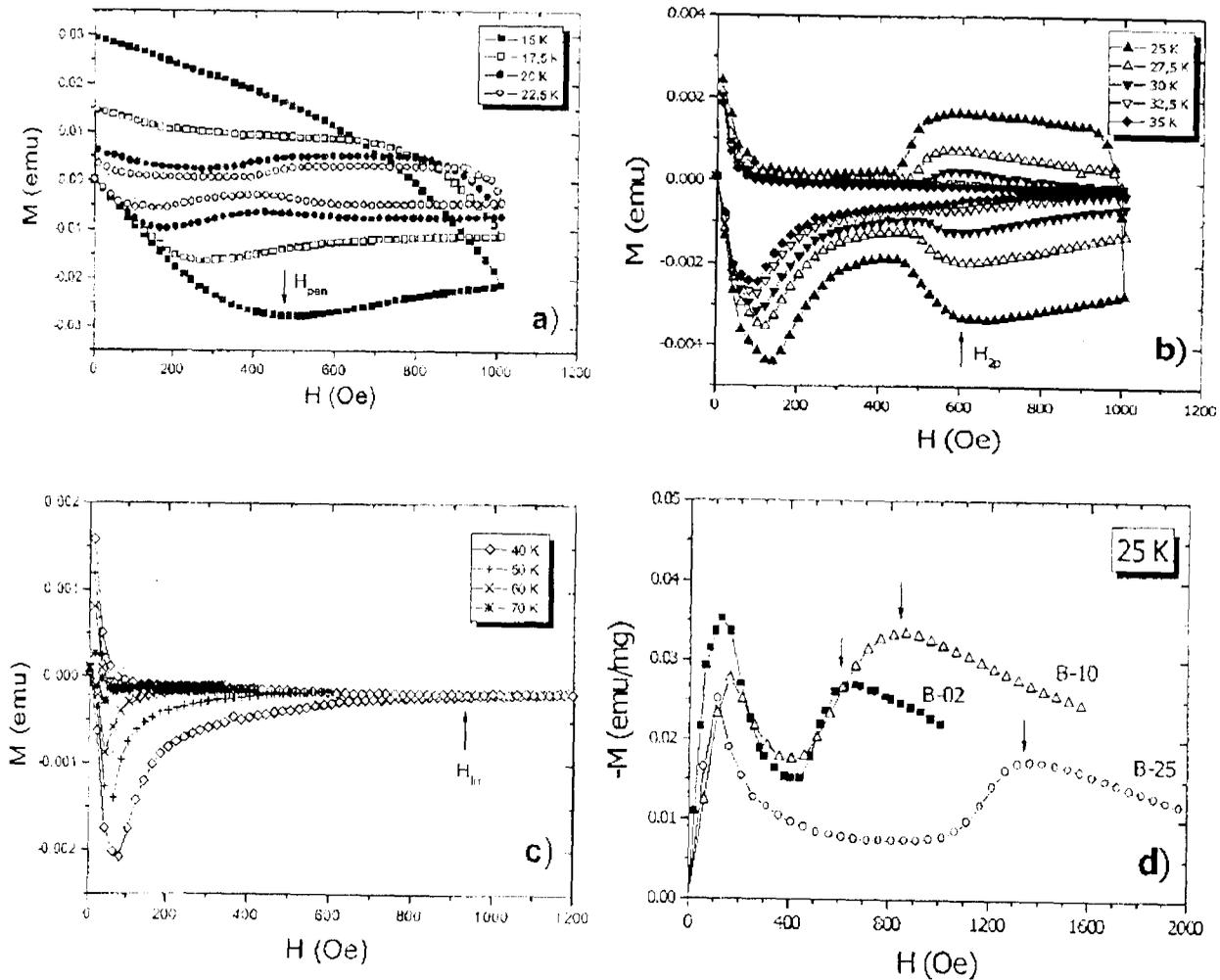
dengan memperhatikan komposisi awal bahan umpan dan pelarut yang digunakan, fasa takmurnian tersebut diduga merupakan kelompok senyawa  $(\text{Ca,Sr})\text{-Cu-O}$  [9]. Jelas dari hasil eksperimen ini bahwa penumbuhan kristal tunggal dalam atmosfer oksigen umumnya akan menghadapi masalah tumbuhnya fasa takmurnian.

Lebih jauh, dari hasil pemotretan kristal B-02 dengan kamera Laue yang ditunjukkan pada Gambar 2d tampak pola hamburan balik Laue dengan sumbu  $c$  kristal berarah tegak lurus bidang gambar. Berdasarkan pola difraksi hasil simulasi komputer dan hasil foto serupa dari kristal sejenis [10] dapat disimpulkan bahwa sumbu  $b$  berarah horizontal dalam bidang gambar, dan dengan demikian, sumbu  $a$  berarah vertikal. Meskipun kurang jelas terlihat pada Gambar 2d, berdasarkan pengamatan HREM [11] dapat disimpulkan bahwa sepanjang sumbu  $b$  terbentuk "kisi super" (*superlattice*) sebagai akibat hilangnya lapisan Bi-O di tempat tertentu secara berkala. Fakta ini memperkuat anggapan bahwa pertumbuhan kristal berlangsung sejajar dengan sumbu  $a$ .

Pengukuran resistivitas pada bidang  $ab$  sebagai fungsi suhu menghasilkan kurva  $\rho_{ab}(T)$  yang disajikan pada Gambar 3. Suhu kritis ( $T_c$ ) ditentukan oleh letak puncak kurva turunan ( $d\rho_{ab}/dT$ ) seperti terlihat pada inset Gambar 3. Nilai  $T_c$  untuk kristal B-02, B-10, dan B-25 berturut-turut adalah 98 K, 88 K, dan 79 K. Menurunnya nilai  $T_c$  untuk ketiga kristal sesuai dengan meningkatnya kadar oksigen, sebagaimana telah dilaporkan oleh peneliti lain sebelumnya [12].



Gambar 3 Resistivitas pada bidang  $ab$  ( $\rho_{ab}$ ) sebagai fungsi suhu  $T$ . Turunan kurva resistivitas ( $d\rho_{ab}/dT$ ) sebagai fungsi suhu diperlihatkan dalam inset gambar



Gambar 4 Kurva histeresis M-H untuk kristal B-02 pada rentang suhu : a). 15-22,5 K, b). 25-35 K, c). 40-70 K, d). Kurva M-H pada suhu 25 K untuk kristal B-02, B-10 dan B-25.

Gambar 4a-c memperlihatkan hasil pengukuran magnetisasi sebagai fungsi medan magnet luar H (kurva histeresis, M-H) untuk kristal B-02 pada suhu 15 K sampai dengan 70 K. Secara keseluruhan, setiap kurva M-H mempunyai puncak pertama ( $H_{pen}$ ) yang menandai awal terjadinya penembusan medan magnet ke dalam sampel, yang berkaitan dengan berakhirnya efek Meissner dan terbentuknya vorteks (fluksoid) dalam bahan yang bersangkutan. Jadi, untuk medan  $H > H_{pen}$  sampel berada dalam keadaan *campuran (mixed-state)*, yang terdiri atas daerah superkonduktif dan daerah normal yang tertembus medan. Dalam rentang suhu antara 20 K dan 32,5 K pada kurva M-H muncul gejala *puncak kedua (second peak effect)* pada medan  $H_{2p}$ . Puncak kedua merupakan gejala anomali dari kurva M-H yang berkaitan dengan terjadinya efek *pinning* maksimum [13]. Asal-usul dan mekanisme terjadinya puncak kedua ini masih dalam kajian berlanjut dan penjelasannya baru berupa sejumlah model [15-17]. Khusus bagi superkonduktor BSCCO-2212, sejauh ini telah diyakini bahwa munculnya puncak kedua ini

berkaitan dengan terjadinya lintas-silang dimensionalitas dari kisi vorteks 3-dimensi (3D) menjadi vorteks kuasi 2-dimensi (2D) [18]. Ini berarti bahwa medan puncak kedua  $H_{2p}$  kira-kira sama dengan medan lintas silang  $H_{3D-2D}$  yang diungkapkan sebagai berikut:

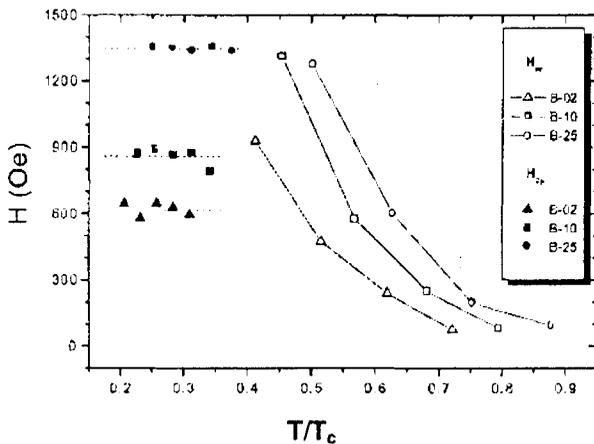
$$H_{2p} \cong H_{3D-2D} = \frac{\Phi_0}{(\gamma s)^2} \tag{1}$$

Dalam persamaan (1),  $\Phi_0$  adalah satuan kuantum fluksoid ( $= 2,07 \times 10^{-15}$  weber),  $\gamma$  parameter anisotropi, dan s jarak antara bidang  $CuO_2$  yang berdekatan. Pada Gambar 4a dan 4b, letak puncak kedua ( $H_{2p}$ ) tampak hampir tidak bergantung pada suhu dan ciri ini hanya muncul dalam rentang suhu yang terbatas. Gambar 4d memperlihatkan pergeseran  $H_{2p}$  (tanda panah) kepada medan yang lebih tinggi bila kandungan oksigen kristal meningkat.

Efek lain yang dapat ditunjukkan dari kurva M-H adalah terdapatnya medan takreversibel ( $H_{ir}$ ), yang menandai terpisahnya kurva magnetisasi untuk pengukuran dengan medan yang membesar dan medan yang mengecil, seperti

pada Gambar 4c. Dalam hubungannya dengan vorteks, pada medan  $H_{irr}$  terjadi *depinning* (hilangnya efek *pinning*) vorteks dan pada keadaan ini bahan superkonduktor tidak lagi dapat menghantarkan arus tanpa disipasi (rapat arus kritis  $J_c = 0$ ). Terlihat pada Gambar 4c bahwa semakin tinggi suhu, semakin kecil medan  $H_{irr}$  pada kristal tersebut.

Dalam Gambar 5 diperlihatkan perbandingan kurva  $H_{2p}$  dan  $H_{irr}$  sebagai fungsi suhu tereduksi ( $T/T_c$ ) untuk ketiga kristal. Jelas bahwa kurva  $H_{2p}$  bergeser pada medan yang lebih besar untuk kristal yang kandungan oksigennya makin meningkat. Sehubungan dengan itu, kurva  $H_{irr}$  juga bergeser ke arah suhu dan medan yang semakin besar pada kristal yang bersangkutan. Kedua hal ini memperkuat dugaan bahwa kehadiran oksigen dalam kristal menimbulkan cacat titik (*point defect*) yang mengurangi derajat ketertiban dalam kristal dan bertindak sebagai pusat *pinning* [15].

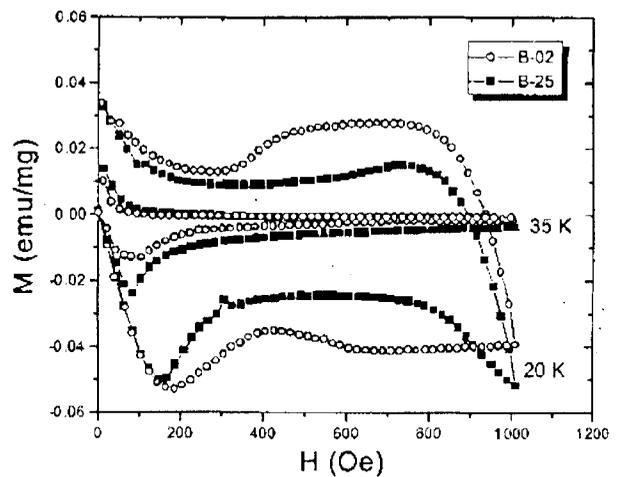


**Gambar 5** Diagram fasa H-T yang memuat garis takreversibel ( $H_{irr}$ ) dan medan puncak kedua ( $H_{2p}$ )

Lebih lanjut, melalui persamaan (1) dapat dihitung tetapan anisotropi dengan mengambil nilai rerata  $H_{2p}$  dari Gambar 5 dan  $s = c/2$  dari Tabel 1. Hasilnya adalah  $\gamma^2 = 14.123, 10.173, \text{ dan } 6489$  berturut-turut untuk kristal B-02, B-10, dan B-25. Hasil ini jelas menunjukkan bahwa kehadiran oksigen juga berpengaruh pada penurunan anisotropi kristal sebagaimana telah dilaporkan sebelumnya [18], dan ini berdampak pada peningkatan kopling antarlapisan  $CuO_2$  yang memperkuat garis vorteks [19]. Berdasarkan tetapan anisotropinya dapat dibandingkan tingkat doping oksigen pada kristal yang ditumbuhkan dalam studi ini dengan kristal serupa yang kandungan oksigennya diatur melalui penganilan akhir. Dari pustaka [20] diketahui bahwa kristal BSCCO-2212 yang ditumbuhkan dalam udara (*as-grown crystal*) memiliki  $\gamma^2 = 14.400$ , kristal yang didoping oksigen secara optimal menghasilkan  $\gamma^2 = 16.900$ , dan kristal yang mengalami *overdoping* memiliki  $\gamma^2 = 10.000$ . Berdasarkan pustaka ini, hasil penumbuhan kristal dalam

lingkungan udara (B-02) dalam studi ini tampak *reproducible* dan kandungan oksigennya sedikit di atas kadar optimal. Sementara itu, kandungan oksigen untuk kristal B-10 dan B-25 masing-masing sesuai dengan kristal yang *overdoping* dan sedikit di atasnya.

Untuk mengetahui lebih jauh peranan oksigen pada suhu rendah, dalam Gambar 6 ditampilkan kurva M-H untuk kristal B-02 dan B-25 pada suhu 20 K dan 35 K. Terlihat pada suhu 20 K bahwa magnetisasi per satuan massa kristal lebih besar untuk sampel B-02 daripada untuk sampel B-25, dan hal sebaliknya terjadi pada suhu 35 K. Diduga keadaan ini disebabkan oleh efek *pinning* akibat cacat kristal yang berupa kekosongan oksigen, seperti yang dilaporkan oleh Yang *et al.* [15]. Dari data yang tidak ditampilkan di sini, efek *pinning* jenis ini efektif pada suhu di bawah 30 K.



**Gambar 6** Perbandingan magnetisasi persatuan massa untuk kristal B-02 dan B-25 pada suhu 20 K dan 35 K.

#### 4 Kesimpulan

Telah ditunjukkan dalam eksperimen ini hasil penumbuhan kristal tunggal superkonduktor BSCCO-2212 dalam atmosfer yang bervariasi kadar oksigennya. Meningkatnya kadar oksigen menyebabkan pertumbuhan fasa takmurnian dan dengan demikian menghasilkan variasi komposisi kation dari kristal yang terbentuk. Peningkatan jumlah atom O dalam kristal menurunkan suhu kritis  $T_c$  serta mengurangi anisotropi. Dalam diagram fasa H-T, sebagai akibat penurunan anisotropi, medan puncak kedua yang dikaitkan dengan terjadinya lintas-silang dimensionalitas vorteks, ( $H_{2p}$ ), menjadi lebih besar. Sementara itu, garis takreversibel ( $H_{irr}$ ) bergeser ke arah suhu dan medan yang lebih tinggi akibat peningkatan kopling antarlapisan  $CuO_2$ . Perbandingan dengan sampel kristal tunggal yang dikenal dalam literatur memberi indikasi bahwa kristal yang terbentuk dalam eksperimen ini mengandung oksigen yang bervariasi dari sedikit di atas doping optimal hingga melebihi kasus *overdoping*.

## Ucapan terima kasih

Penelitian ini merupakan salah satu realisasi kerjasama riset antara Jurusan Fisika ITB dan Universiteit van Amsterdam (UvA). Penulis mengucapkan terima kasih kepada FOM-ALMOS, The Netherlands, atas penggunaan fasilitas eksperimen dan pemberian beasiswa kepada salah satu penulis (D) untuk melakukan riset di UvA. Sebagian penelitian ini dibiayai oleh Proyek RUT-V dengan kontrak No. 207/SP/RUT/BPPT/IV/97. Penulis juga mengucapkan terima kasih kepada Prof. K. Kishio, Universitas Tokyo, Jepang, atas penggunaan peralatan spektrometri ICP, dan kepada Prof. M.O. Tjia, Jurusan Fisika ITB, atas saran perbaikan yang telah diberikan untuk penyempurnaan tulisan ini.

## Daftar pustaka

1. P. Fischer, "Large, flux-free  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-d}$  single crystals by improved CuO-BaO flux growth", *Physica C* **196**, 105-110 (1992).
2. V. N. Osipov, L. I. Derkachenko, Yu. G. Nosov, V. N. Gurin, W. Jung, and R. Muller, "Single crystals of 2223 phase in the Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O system: characterization and Knoop microhardness", *Solid State Commun.* **97**, 377-380 (1996).
3. A. Katsui and H. Ohtsuka, "Solution growth of Bi-Sr-Ca-Cu-O compounds using alkali chlorides", *J. Cryst. Growth* **91**, 261-263 (1988).
4. T. Yasuda and S. Takano, "Growth of single crystals of the Bi-Sr-Ca-Cu-O superconductor from a KCl flux", *Jpn. J. Appl. Phys.* **30**, 349-351 (1991).
5. S. Chu and M. E. McHenry, "Growth and characterization of  $(Bi,Pb)_2Sr_2Ca_2Cu_3O_x$  single crystals", *J. Mater. Res.* **13**, 589-595 (1998).
6. J. I. Gorina, G. A. Kaljuzhnaia, V. P. Martovitsky, V. V. Rodin, N. N. Sentjurina, and V. A. Stepanov, "Growth and structural and superconducting properties of  $Bi_2Sr_2Ca_2Cu_3O_{10}$  (Bi2223) crystals grown in cavities formed in solution-melt KCl", *Solid State Commun.* **110**, 287-292 (1999).
7. D. H. Ha, K. Oka, F. Iga, and Y. Nishihara, "Homogeneity of  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+d}$  crystal boules grown by the travelling solvent floating zone method", *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, 778-781 (1993).
8. A. Revcolevschi and J. Jegoudecz, "Growth of large high-Tc single crystals by the floating zone method: A review", *Prog. Mater. Sci.* **42**, 321-339 (1997).
9. P. Strobel, J. C. Toledano, D. Morin, J. Schneek, G. Vacquier, O. Monnereau, J. Primot, and T. Fournier, "Phase diagram of the system  $Bi_{1.6}Pb_{0.4}Sr_2CuO_6-CaCuO_2$  between 825 C and 1100 C", *Physica C* **201**, 27-42 (1992).
10. M.J.V. Menken, "High-Tc superconductors : crystal growth, characterization and some physical properties", Ph.D Thesis, University of Amsterdam, 27 (1991).
11. Y. Matsui, H. Maeda, Y. Tanaka, and S. Horiuchi, "Possible model of the modulated structure in high-Tc superconductor in a Bi-Sr-Ca-Cu-O system revealed by high-resolution electron microscopy", *Jpn. J. Appl. Phys.* **27**, 372-375 (1988).
12. Y. Kotaka, T. Kimura, H. Ikuta, J. Shimoyama, K. Kitazawa, K. Yamafuji, K. Kishio, and D. Pooke, "Doping state and transport anisotropy in  $Bi_{2212}$  single crystals", *Physica C* **235-240**, 1529-1530, (1994).
13. M.C. de Andrade, G. Triseone, M.B. Maple, S. Spagma, J. Dienderichs, and R.E. Sager, "Dimensional crossover and peak effect in a superconducting  $Pr_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$ ", *Physica C* **273**, 268-274 (1997).
14. G. Yang, P. Shang, S. D. Sutton, I. P. Jones, J. S. Abell, and C. E. Gough, "Competing pinning mechanisms in  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_y$  single crystals by magnetic and defect structural studies", *Phys. Rev. B* **48**, 4054-4060 (1993).
15. Y. Yeshurun, N. Bontemps, L. Burlachkov, and A. Kapitulnik, "Dynamic characteristics of the anomalous second peak in the magnetization curves of Bi-Sr-Ca-Cu-O", *Phys. Rev. B* **49**, 1548-1551 (1994).
16. C. Bernhard, C. Wenger, Ch. Niedermayer, D. M. Pooke, J. L. Tallon, Y. Kotaka, J. Shimoyama, K. Kishio, D. R. Noakes, C. E. Stronach, T. Sembiring, and E. J. Ansaldo, "Anisotropy and dimensional crossover of the vortex state in  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+d}$  crystals", *Phys. Rev. B* **52**, 7050-7053 (1995).
17. L. I. Glazman and A. E. Koshelev, "Thermal fluctuations and phase transitions in the vortex state of a layered superconductor", *Phys. Rev. B* **43**, 2835-2843 (1991).
18. K. Kishio, J. Shimoyama, T. Kimura, Y. Kotaka, K. Kitazawa, K. Yamafuji, Q. Li, and M. Suenaga, "Carrier doping and interlayer coupling in HTSC single crystals", *Physica C* **235-240**, 2775-2776 (1994).
19. G. W. Crabtree and D. R. Nelson, "Vortex physics in high-temperature superconductors", *Phys. Today* **50**, 38-45 (1997).
20. B. Khaykovich, E. Zeldov, D. Majer, T. W. Li, P. H. Kes, and M. Konczykowski, "Vortex-lattice phase transitions in  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$  crystals with different oxygen stoichiometry", *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2555-2558 (1996).