

## STUDI KORELASI STRUKTUR TERHADAP SUHU TRANSISI SUPERKONDUKTOR DOPING ELEKTRON $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$

YATI MARYATI<sup>1,\*</sup>, SUCI WINARSIH<sup>1</sup>, MUHAMMAD ABDAN SYAKUUR<sup>1</sup>, MAYKEL MANAWAN<sup>2</sup>,  
TOGAR SARAGI<sup>1</sup>, RISDIANA<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Departemen Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Padjadjaran  
Jl. Raya Bandung-Sumedang Km 21, Jatinangor 45363

<sup>2</sup>Fakultas Teknologi Pertahanan, Universitas Pertahanan Indonesia, Bogor 16810, Jawa Barat, Indonesia

**Abstrak.** Superkonduktor doping elektron  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$  telah berhasil disintesis dengan konsentrasi doping Ce  $x = 0,10$  dan  $x = 0,15$  untuk mempelajari hubungan antara struktur kristal dengan sifat fisis pada sistem superkonduktor berbasis cuprate, yang salah satunya adalah suhu transisi atau suhu kritis ( $T_c$ ). Diketahui bahwa pada sistem superkonduktor berbasis cuprate, perbedaan struktur kristal akan mengakibatkan efek yang berbeda pada sifat fisisnya. Karakterisasi *X-Ray Diffraction* dilakukan untuk mempelajari struktur kristal, dan pengukuran resistivitas dilakukan untuk mengamati adanya gejala superkonduktivitas pada bahan yang dapat menunjukkan nilai  $T_c$ . Hasil karakterisasi XRD menunjukkan bahwa nilai parameter kisi  $c$  menurun sebesar  $1,83 \times 10^{-2}$  Å dan panjang ikatan Eu-O(2) menurun sebesar  $0,07 \times 10^{-2}$  Å seiring dengan meningkatnya konsentrasi doping, akibat adanya penggantian sebagian atom Eu oleh atom Ce yang memiliki radius ionik yang lebih kecil dibandingkan dengan atom Eu. Penurunan nilai panjang ikatan Eu-O(2) yang merupakan jarak antara bidang konduksi  $\text{CuO}_2$  dan *charge reservoir*, dapat mengubah nilai  $T_c$  yang dihasilkan pada superkonduktor doping elektron  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$ .

**Kata kunci:** panjang ikatan, suhu kritis, superkonduktor cuprate doping elektron

**Abstract.** Electron doped superconductor  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$  has been successfully synthesized with doping concentrations of Ce  $x = 0.10$  and  $x = 0.15$  to investigate the relationship between crystal structure and physical properties in cuprate-based superconducting systems, one of which is the transition temperature or critical temperature ( $T_c$ ). It is well-known that in cuprate-based superconducting systems, different crystal structures causes different effects on their physical properties. The X-Ray Diffraction characterization was carried out to study the crystal structure, and resistivity measurements were carried out to observe the presence of superconductivity in the material which can show the value of  $T_c$ . The results from XRD characterization showed that the value of  $c$ -axis decreased by  $1.83 \times 10^{-2}$  Å and the Eu-O(2) bond-length decreased by  $0.07 \times 10^{-2}$  Å with increasing doping concentration, due to the partial replacement of Eu atoms by Ce atoms which has smaller value of ionic radii than that of the Eu atom. The decrease in the value of Eu-O(2) bond-length, which is the distance between the conduction layer of  $\text{CuO}_2$  and the charge reservoir, can change the value of  $T_c$  in the electron-doped superconducting cuprate  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$ .

**Keywords:** bond length, critical temperature, electron-doped superconducting cuprate

### 1. Pendahuluan

Salah satu sifat dasar superkonduktor adalah memiliki resistivitas nol, dimana bahan tersebut mampu menghantarkan arus listrik tanpa hambatan pada suhu tertentu yang dikenal dengan suhu kritis ( $T_c$ ) [1]. Fenomena superkonduktor pertama kali ditemukan pada tahun 1911 oleh seorang Fisikawan Belanda, Heike Kammerlingh Onnes yang berhasil mencairkan helium pada tahun 1908, mengukur resistivitas listrik merkuri pada suhu rendah dengan helium cair, dan menemukan penurunan resistivitas listrik secara mendadak ke resistansi nol [1]. Nilai suhu kritis atau keadaan superkonduktivitas pada material ini sangat kecil, sehingga sangat sulit untuk dimanfaatkan. Pada tahun 1986, Bednorz dan Muller menemukannya bahwa bahan campuran La-Ba-Cu-O memiliki

---

\* email : [yati.maryati@unpad.ac.id](mailto:yati.maryati@unpad.ac.id)

gejala superkonduktivitas dengan  $T_c$  30 K, yang kemudian campuran ini dikenal sebagai *High  $T_c$  Superconducting Cuprates* (HTSC) atau superkonduktor dengan  $T_c$  tinggi berbahan dasar *cuprate*.

HTSC pertama yang ditemukan dengan senyawa awal (*parent compound*) adalah campuran dari dua atom lanthanum (La), satu atom *cuprate* (Cu) dan empat atom oksigen (O) membentuk senyawa  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . Senyawa ini dikenal dengan nama “*Cuprate 214*” sesuai dengan jumlah atom penyusun *parent compound*. Beberapa senyawa utama dalam pembuatan superkonduktor berbasis *cuprate 214* adalah La, Nd, Pr, Sm dan Eu. Salah satu karakteristik dari bahan HTSC adalah adanya lapisan atau bidang  $\text{CuO}_2$  yang bertanggung jawab atas sifat-sifat elektroniknya. Ketika lapisan  $\text{CuO}_2$  kehilangan elektron karena doping, maka akan terbentuk *hole* pada lapisan ini sehingga disebut superkonduktor doping *hole*. Sebaliknya, ketika lapisan  $\text{CuO}_2$  kelebihan elektron, maka akan menghasilkan superkonduktor doping elektron [2].

Berdasarkan bentuk bidang  $\text{CuO}_2$ , terdapat tiga jenis konfigurasi bidang  $\text{CuO}_2$ , yaitu struktur oktahedral  $\text{CuO}_6$  (T) superkonduktor doping *hole*  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  yang memiliki apikal oksigen pada kedua sisinya, struktur piramida  $\text{CuO}_5$  (T\*)  $\text{Nd}_{2-x-y}\text{Ce}_x\text{Sr}_y\text{CuO}_4$  yang memiliki apikal oksigen pada salah satu sisi, dan struktur planar  $\text{CuO}_4$  (T') superkonduktor doping elektron  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  yang tidak memiliki oksigen pada posisi apikal. Perbedaan oksigen apikal ini menyebabkan efek yang berbeda pada sifat fisisnya [3], sehingga struktur kristal sangat penting untuk dipelajari. Selain  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ , superkonduktor doping elektron yang memiliki struktur kristal tetragonal T' adalah  $\text{Pr}_{1-x}\text{La}_x\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$  (PLCCO), dan  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$  (ECCO) [4-11]. Struktur kristal tipe T' terdiri dari dua bagian penting, yaitu bidang konduksi planar  $\text{CuO}_2$  dan bidang *charge reservoir* [2].

Dalam kasus superkonduktor berbasis Fe-As pada  $\text{NdO}_{1-x}\text{F}_x\text{FeAs}$ , parameter kisi dan panjang ikatan atom berkaitan dengan nilai  $T_c$ . Dilaporkan bahwa panjang ikatan La-As berbanding terbalik dengan nilai  $T_c$  [12]. Panjang ikatan La-As merupakan panjang ikatan antara atom La yang berada pada lapisan *charge reservoir* dengan atom As yang berada pada lapisan konduksi Fe-As. Meskipun telah dilaporkan bahwa hubungan antara panjang ikatan dan  $T_c$  pada superkonduktor berbasis FeAs saling berkorelasi, namun untuk jenis superkonduktor lain belum sepenuhnya diklarifikasi, salah satunya adalah pada superkonduktor doping elektron berbasis cuprate  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$ .

Pada penelitian sebelumnya dijelaskan bahwa nilai parameter kisi  $a$  dan  $c$  yang berubah terhadap penambahan konsentrasi doping Ce [13,14]. Sehingga dalam penelitian ini, superkonduktor doping elektron  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$  disintesis dengan variasi konsentrasi Ce  $x = 0,10$  dan  $x = 0,15$  untuk mempelajari hubungan antara parameter kisi dengan sifat fisis berupa  $T_c$  pada sistem superkonduktor berbasis cuprate.

## 2. Metoda Penelitian

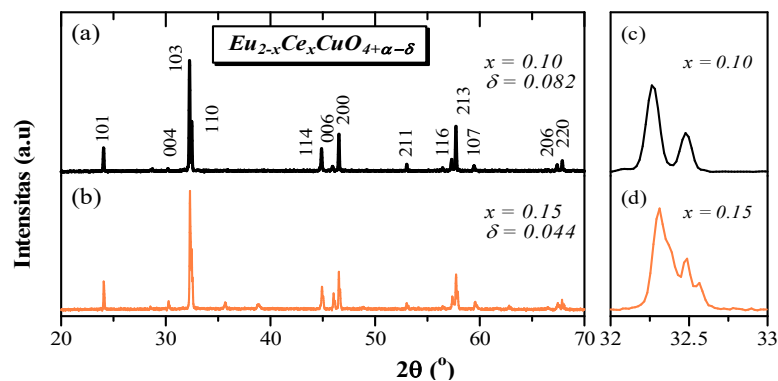
Sintesis bahan superkonduktor doping elektron  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$  dengan konsentrasi doping Ce  $x = 0,10$  dan  $0,15$  dilakukan dengan metode reaksi padatan [7-10]. Tahapan dari metode ini adalah persiapan bahan precursor  $\text{Eu}_2\text{O}_3$ ,  $\text{CeO}_2$ , dan  $\text{CuO}$ , selanjutnya bahan ditimbang dengan massa yang telah dihitung sesuai dengan konsentrasi doping Ce yang diinginkan. Bahan yang telah ditimbang, kemudian digerus menggunakan *mortar* dan *pestle* yang terbuat dari keramik, selama kurang lebih 45 menit sampai diperoleh campuran yang homogen atau terlihat berwarna abu-abu muda. Setelah bahan selesai digerus, sampel ditempatkan dalam cawan (*crucible*) dan dimasukkan ke dalam oven pemanas (*furnace*) pada suhu konstan  $900^\circ\text{C}$  selama 20 jam. Sampel hasil *prefire* berbentuk padatan keras berwarna hitam kemudian digerus ulang selama 25 menit. Setelah selesai digerus, sampel kemudian dimasukkan kembali ke dalam cawan dan dilakukan proses sintering di dalam *furnace* dengan suhu  $1050^\circ\text{C}$  selama 16 jam. Pada proses sintering, akan terbentuk single crystal ECCO.

Sampel hasil sintering berbentuk padatan yang keras dan berwarna hitam, kemudian digerus ulang selama kurang lebih 25 menit. Sampel yang telah halus kemudian dibentuk menjadi pellet menggunakan *hydraulic press* dengan diameter 10 mm. Selanjutnya dilakukan sintering kedua dengan suhu dan waktu yang sama agar sampel menjadi keras. Sampel yang telah disintering yang kedua kalinya terlebih dahulu ditimbang dengan neraca digital kemudian disusun dalam *crucible boat* (krusibel berbentuk perahu) dan dimasukkan ke dalam *annealing device* dengan mengalirkan gas Argon pada suhu 900 °C selama 10 jam. Proses annealing dilakukan untuk mengurangi kandungan oksigen dalam bahan. Nilai delta ( $\delta$ ) dihitung dari perubahan massa sebelum dan sesudah proses annealing.

Struktur kristal dan kualitas sampel dikarakterisasi menggunakan *X-Ray Diffraction (XRD)*. Parameter kisi, kemurnian, dan panjang ikatan  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$  dianalisis dengan metode *Rietveld refinement*. Resistivitas sampel dilakukan dengan menggunakan metode *four point probe* pada rentang suhu 4 K – 300 K untuk mendapatkan sifat fisis berupa  $T_c$ .

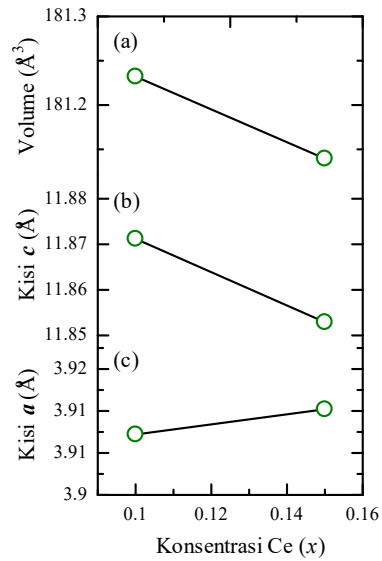
### 3. Hasil dan Pembahasan

Pola *X-Ray Diffraction* sampel superkonduktor doping elektron  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$  dengan konsentrasi doping  $x = 0,10$  dan  $0,15$  ditunjukkan pada Gambar 1(a-b). Puncak utama struktur kristal tetragonal T' yang umum ditemukan pada system superkonduktor doping elektron pada indeks Miller (103) dan (110) ditunjukkan pada Gambar 1(c-d). Hasil ini menunjukkan bahwa proses sintesis telah berhasil dilakukan dengan mendapatkan struktur kristal yang sesuai dengan literatur [4-11].



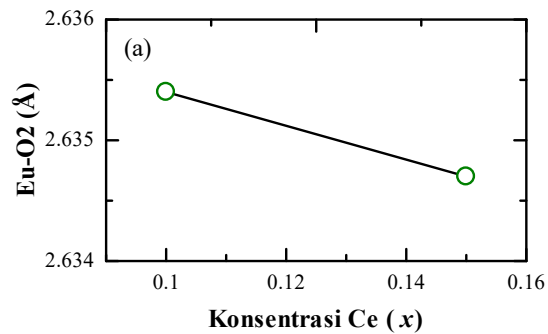
**Gambar 1.** Pola XRD sampel  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$  dengan (a)  $x = 0,10$ ; (b)  $x = 0,15$  dan puncak utama struktur kristal tetragonal pada (c)  $x = 0,10$ ; (d)  $x = 0,15$ .

Gambar 2 menunjukkan perubahan nilai parameter kisi terhadap penambahan konsentrasi doping Ce. Nilai parameter kisi  $a$  cenderung stabil dengan penambahan konsentrasi doping Ce, ditunjukkan pada Gambar 2(c) Sedangkan, nilai parameter kisi  $c$  menurun dengan penambahan konsentrasi doping Ce, ditunjukkan pada Gambar 2 (b). Hal ini dikarenakan nilai ion radius atom Eu ( $0,95\text{\AA}$ ) lebih besar dibandingkan dengan atom Ce ( $0,87\text{\AA}$ ), sehingga penggantian sebagian atom Eu oleh atom Ce mengakibatkan parameter kisi menurun. Mengikuti perubahan parameter kisi  $c$ , nilai volume unit sel menurun seiring penambahan konsentrasi doping Ce, ditunjukkan pada Gambar 2(a).



**Gambar 2.** Perubahan nilai parameter kisi terhadap konsentrasi doping Ce pada  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$ .

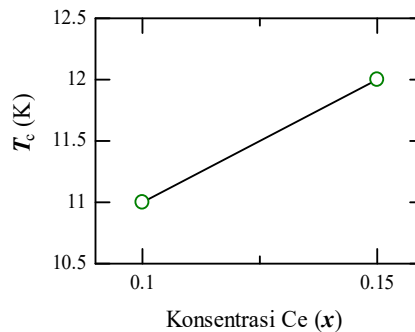
Nilai panjang ikatan Eu-O(2) pada  $x = 0,10$  adalah  $2,6354 \text{ \AA}$  dan  $x = 0,15$  adalah  $2,6347 \text{ \AA}$ . Jika dibandingkan dengan *mother compound* dari  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$ , nilai panjang ikatan Eu-O(2) berkurang akibat adanya substitusi doping Ce di situs Eu, ditunjukkan pada Gambar 3.



**Gambar 3.** Perubahan panjang ikatan Eu-O(2) terhadap konsentrasi doping Ce pada  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$ .

Gejala superkonduktivitas umumnya dapat ditentukan dengan adanya interaksi atom pada lapisan konduksi yang berasal dari *charge reservoir*. Gambar 4. Menunjukkan peningkatan nilai  $T_c$  terhadap penambahan doping Ce. Nilai  $T_c$  yang dihasilkan pada  $x = 0,10$  adalah 11 K dan  $x = 0,15$  adalah 12 K [10]. Peningkatan nilai  $T_c$  ini berbanding terbalik dengan nilai panjang ikatan Eu-O(2) yang menurun terhadap penambahan doping Ce. Dimana panjang ikatan Eu-O(2) merupakan jarak antara

atom Eu yang berada pada *charge reservoir* dengan atom O yang berada pada lapisan konduksi  $\text{CuO}_2$ . Ketika nilai panjang ikatan Eu-O(2) semakin besar, maka jarak antara lapisan konduksi  $\text{CuO}_2$  dan *charge reservoir* semakin jauh yang menyebabkan interaksi muatan menjadi lebih sulit terjadi dan menghasilkan  $T_c$  yang lebih kecil. Peristiwa ini mungkin terjadi karena pada umumnya struktur elektronik bahan ditentukan oleh susunan atom, dan panjang ikatan mencerminkan interaksi antara atom [12]. Hasil ini menunjukkan kesesuaian dengan penelitian Chen, dkk [12] yang menyatakan bahwa Panjang ikatan La-As berbanding terbalik dengan nilai  $T_c$ .



**Gambar 4.** Perubahan suhu kritis ( $T_c$ ) terhadap konsentrasi doping Ce  $x = 0.15$  [10] dan  $x = 0.10$  pada  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$ .

#### 4. Kesimpulan

Superkonduktor doping elektron  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$  dengan  $x = 0, 10$ , dan  $0, 15$  telah berhasil dipelajari. Hasil analisis XRD menunjukkan bahwa sampel memiliki struktur kristal tetragonal T' yang ditunjukkan dengan adanya puncak utama pada indeks Miller (103) dan (110). Nilai parameter kisi  $c$  menurun seiring dengan meningkatnya doping Cerium. Penurunan nilai Panjang ikatan Eu-O(2) diasumsikan dapat mempengaruhi nilai  $T_c$  pada bahan  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$ .

#### Ucapan Terimakasih

Penulis mengucapkan terimakasih kepada Kemenristek Dikti untuk dukungan dana penelitian skema "Penelitian Dasar Unggulan Perguruan Tinggi" dengan kontrak no. 1207/UN6.3.1/PT.00/2021.

#### Daftar Pustaka

- [1] Mourachkine, Andrei. *Room Temperature Superconductivity*. 7 Meadow Walk Great Abington. Cambridge International Science Publishing: United Kingdom. 2004.
- [2] Risdiana, T. Adachi, I. Watanabe, and Y. Koike, *Cu-Spin Fluctuations in Hole-Doped and Electron-Doped High- $T_c$  Superconducting Cuprates Relating to Stripe Pinning*, AIP Conf. Proc. 1454, 275 (2012).
- [3] M. Ikeda. 2006. Thesis: *Photoemission Study of Electron-doped High- $T_c$  Superconductors*. Departement of Complexity Science dan Engineering. University of Tokyo.
- [4] Risdiana, T. Adachi, Y. Koike, I. Watanabe and K. Nagamine, *Absence of The Impurity-Induced Magnetic Order in The Electron-Doped High- $T_c$  Cuprates  $\text{Pr}_{0.86}\text{LaCe}_{0.14}\text{Cu}_{1-y}(\text{Zn,Ni})_y\text{O}_4$* , Physica C 355, 426-431 (2005).

- [5] M. A. Syakuur, Y. Maryati, U. Widyaiswari, D. P. Sari, T. Saragi and Risdiana, *The Dependence of Magnetic Moments on Magnetic Impurities of Ni in  $\text{Eu}_{1.86}\text{Ce}_{0.14}\text{Cu}_{1-y}\text{Ni}_y\text{O}_{4+\alpha-\delta}$* , Key Engineering Materials 860, 148-153 (2020).
- [6] Y. R. Tayubi, Y. Maryati, N. Nafisah, D. G. Aulia, E. Nurwati, T. Amalia, M. A. Syakuur, Wiendartun, S. Feranie, T. Saragi and Risdiana, *Study of Purity and Electrical Resistivity of  $\text{Eu}_{1.91}\text{Ce}_{0.09}\text{CuO}_4$  and  $\text{Eu}_{1.84}\text{Ce}_{0.16}\text{CuO}_4$* , Key Engineering Materials 860, 160-164 (2020).
- [7] Risdiana, M. Saputri, M. F. Sobari, A. I. Hanifah, W. A. Somantri, T. Saragi, *Structural and Magnetic Properties of n-type Superconductor  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$* , IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering 196, 012012 (2017).
- [8] Risdiana, S. Pratiwi, D. Suhendar, W. A. Somantri, L. Safriani, T. Saragi, *Dependence of Oxygen Content with Physical Properties in Electron-Doped Superconducting Cuprates  $\text{Eu}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$* , AIP Conf. Proc. 1712, 050020 (2016).
- [9] Y. Maryati, N. Nafisah, D. G. Auliya, E. Nurwati, T. Amalia, Y. R. Tayubi, T. Saragi and Risdiana, *Study of Magnetic Properties in Electron Doped Superconductor  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha}$* , Materials Science Forum 966, 314-318 (2019).
- [10] Y. Maryati, A. I. Hanifah, M. A. B. Subardhi, E. A. Rahayu, Y. R. Tayubi, M. Manawan, T. Saragi and Risdiana, *The Effect of Heating Treatment in Electron Doped Superconductor  $\text{Eu}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$* , Journal of Physics: Conf. Ser. 1080, 012022 (2018).
- [11] T. B. Charikova, N. G. Shelushinina, G. I. Harus, D. S. Petukhov, O. E. Petukhova, A. A. Ivanov, *Resistivity Tensor Correlations in The Mixed State of Electron-Doped Superconductor Structural and Magnetic Properties of n-type Superconductor  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$* , Physica C 78, 525-526 (2016).
- [12] C. Ning, L. Yang, J. YaKui, Q. ShaoPeng, Z. WanJie and L. Yang, *Effect of Bond Length and Radius on Superconducting Transition Temperature for FeAs-Based Superconductors*, Sci. China Phys. Mech., 53 (2010) 59–63.
- [13] S.N. Khayati, M. Savitri, Y. Maryati, K. Winda, W.A. Somantri, T. Saragi, dan Risdiana, *Sintesis dan Karakterisasi Under-doped Superconductor Doping Electron  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$* , Proseding SENFA (2015).
- [14] M. F. Sobari, M. Saputri, A. I. Hanifah, W.A. Somantri, T. Saragi dan Risdiana, *Analisis Struktur dan Sifat Magnet Bahan Superkonduktor  $\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\alpha-\delta}$  Electron-doped*, Proseding SENFA (2016).