

## Pembentukan Fasa dan Suhu Gending Superkonduktor $(\text{Tl}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})\text{Sr}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{2-x}\text{Cr}_x)\text{O}_{7-\delta}$ ( $x = 0 - 0.100$ )

(Phase Formation and Critical Temperature of  $(\text{Tl}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})\text{Sr}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{2-x}\text{Cr}_x)\text{O}_{7-\delta}$  ( $x = 0 - 0.100$ ) Superconductor)

E. YUSRIANTO, A.N. JANNAH & R. ABD-SHUKOR\*

### ABSTRAK

Superkonduktor fasa  $(\text{Tl}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})\text{Sr}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{2-x}\text{Cr}_x)\text{O}_{7-\delta}$  (Tl-1212) bagi  $x = 0$  hingga  $0.100$  telah disediakan menggunakan kaedah tindak balas keadaan pepejal. Tujuan kajian ini ialah menentukan suhu optimum untuk pembentukan fasa Tl-1212 dengan komposisi ini. Sampel telah disediakan dalam aliran gas oksigen dalam tiga suhu berlainan iaitu  $850\text{ }^\circ\text{C}$  dalam kerajang perak selama 5 jam, dan  $950\text{ }^\circ\text{C}$  dan  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  selama 4 min. Bahan telah diciri menggunakan kaedah pembelauan sinar-X untuk mengenal pasti fasa dan pengukuran rintangan elektrik ( $R$ ) untuk menentukan suhu gending. Sampel yang dipanaskan pada  $950\text{ }^\circ\text{C}$  menunjukkan pecahan isi padu fasa Tl-1212 yang tertinggi ( $94\%$  bagi  $x = 0$ ). Sampel yang dipanaskan pada  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  menunjukkan suhu gending yang tertinggi dengan  $x = 0.100$  menunjukkan suhu gending mula,  $T_{c\text{mula}}$  tertinggi iaitu  $102\text{ K}$ . Terbitan rintangan melawan suhu ( $T$ ),  $dR/dT$  menunjukkan sampel yang dipanaskan pada  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  ( $x = 0.015 - 0.100$ ) mempunyai puncak yang hampir sama iaitu  $T_{p1} = T_{p2}$ . Ini menunjukkan suhu kesuperkonduksian intrabutiran ( $T_{p1}$ ) dan antara butiran ( $T_{p2}$ ) berlaku adalah sama. Hasil kajian ini menunjukkan suhu pemanasan  $950\text{ }^\circ\text{C}$  adalah suhu optimum untuk pembentukan fasa Tl-1212 sementara  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  adalah suhu optimum untuk mendapatkan suhu gending tertinggi.

Kata kunci: Pembelauan sinar-X; pembentukan fasa; rintangan elektrik; suhu pemanasan

### ABSTRACT

The  $(\text{Tl}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})\text{Sr}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{2-x}\text{Cr}_x)\text{O}_{7-\delta}$  (Tl-1212) phase with  $x = 0$  to  $0.100$  was prepared using the solid state reaction method. The objective of this work was to determine the optimum temperature for the formation of the Tl-1212 phase with the above composition. The samples were heated in oxygen flow with three different temperatures of  $850\text{ }^\circ\text{C}$  in silver foil for 5 h, and  $950\text{ }^\circ\text{C}$  and  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  for 4 min. The materials were characterized using X-ray diffraction methods to identify phase and electrical resistance ( $R$ ) measurements to determine critical temperature. Samples heated at  $950\text{ }^\circ\text{C}$  showed the highest Tl-1212 phase volume fraction ( $94\%$  for  $x = 0$ ). The samples heated at  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  showed the highest critical temperature with  $x = 0.100$  exhibited the highest onset critical temperature,  $T_{c\text{onset}}$  of  $102\text{ K}$ . The derivative of resistance with respect to temperature ( $T$ ),  $dR/dT$  of the samples heated at  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  ( $x = 0.015 - 0.100$ ) showed almost the same peak temperature where  $T_{p1} = T_{p2}$ . This indicated that superconductivity for intragrain ( $T_{p1}$ ) and between grains ( $T_{p2}$ ) occurred at the same temperature. These results showed that  $950\text{ }^\circ\text{C}$  was the optimum temperature for the formation of the Tl-1212 phase and heat treatment at  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  showed the highest critical temperature.

Keywords: Electrical resistance; heating temperature; phase formation; X-ray diffraction

### PENGENALAN

Sistem talium berasaskan kuprum oksida adalah salah satu daripada keluarga superkonduktor suhu tinggi. Superkonduktor kuprum oksida sistem talium adalah menarik disebabkan suhu gendingnya yang agak tinggi.

Superkonduktor sistem Tl boleh wujud dalam beberapa fasa dengan bilangan lapisan Cu-O atau Tl-O yang berlainan. Terdapat banyak percubaan yang dilakukan untuk memperbaiki fasa  $\text{TlSr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_7$  (Tl-1212) serta meningkatkan sifat superkonduktor termasuk penggantian

dan penambahan unsur ke dalam bahan. Ini termasuklah kesan bahan magnet dan bukan magnet, oksida kompleks, partikel nano serta sebatian ke atas superkonduktor suhu tinggi (Akimov et al. 2006; Gerashchenko et al. 1998; Hassan et al. 2016; Ji et al. 2012; Muhammad-Aizat & Abd-Shukor 2018; Mumtaz et al. 2016). Dalam sistem Tl-1223, K meningkatkan suhu genting sementara Cd menurunkan suhu genting (Hussain et al. 2020).

Antara unsur yang digunakan untuk mengganti tapak Tl di dalam sistem  $\text{TlSr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_7$  adalah Pb, Bi, Cr, V, Re, Zr, In, Er, Gd, Na, K, Rb dan Se. Terdapat beberapa laporan tentang penggantian unsur tunggal pada tapak Tl di dalam  $\text{TlSr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_7$  (Martin et al. 1989; Subramanian et al. 1988). Penggantian Pb pada tapak Tl di dalam  $(\text{Tl}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_7$  berjaya meningkatkan suhu genting,  $T_c$  sehingga 90 K dan pembentukan fasa Tl-1212 juga bertambah baik pada sampel  $x = 0.6$  (Elmasroub & Abd-Shukor 2017). Bi juga sesuai untuk penggantian pada tapak Tl dalam bahan  $(\text{Tl}, \text{Bi})\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$  (Ledésert et al. 1994; Li & Greenblatt 1989; Wahlbeck et al. 1996). Tl, Pb dan Bi berkait rapat antara satu sama lain dan ketiga-tiga unsur ini terletak bersebelahan dalam jadual berkala pada kala yang sama. Ketiga-tiga unsur ini memiliki konfigurasi elektronik dan sifat kimia yang hampir serupa dan ini merupakan penyebab utama Pb dan Bi dipilih untuk menggantikan tapak Tl secara separa.

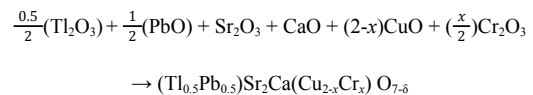
Di samping itu, Cr didapati meningkatkan suhu genting fasa Tl-1212 (Hamadneh et al. 2006; Ibrahim et al. 2009). Sampel  $(\text{Tl}_{0.5}\text{Cr}_{0.5})\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  menunjukkan  $T_c$  pada 110 K (Sheng et al. 1991). Kajian menunjukkan  $T_c$  mula tertinggi iaitu 118 K dipamerkan oleh sampel  $x = 0.15$ . Cr adalah satu-satunya unsur yang meningkatkan  $T_c$  fasa Tl-1212 pada lebih daripada 110 K. Cr juga membantu pembentukan Tl-1212 (Al-Sharabi & Abd-Shukor 2013; Bakar et al. 2018; Ranjbar & Abd-Shukor 2014; Sheng et al. 1991; Subramanian et al. 1988). Keputusan dalam kajian tersebut menunjukkan Cr adalah lebih baik daripada Pb dan Bi dalam menambahbaik sifat superkonduktor  $\text{TlSr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_7$ . Penggantian separa Cr pada tapak Tl sekitar 10-20% mencatatkan  $T_c$  tertinggi iaitu 110 K (Li et al. 1995). Penedapan Cr pada kadar yang rendah tetapi bervalensi tinggi pada tapak Tl telah mengoptimalkan kepekatan pembawa seterusnya berjaya meningkatkan suhu genting dan sifat kesuperkonduksian (Abd-Shukor & Azah Nik Jaafar 1999).

Terdapat juga kajian lain yang melaporkan kesan Cr pada pembentukan fasa  $\text{Tl}_{1-x}\text{Cr}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_7$  (Hamadneh et al. 2006; Ibrahim et al. 2009). Keputusan kajian menunjukkan suhu genting tertinggi adalah pada sampel  $x = 0.15$  dengan catatan suhu genting,  $T_c = 118$  K. Pb dan Cr secara berasingan dilaporkan meningkatkan suhu genting

dan fasa Tl-1212. Kesan bersama Pb dan Cr terhadap fasa Tl-1212 adalah suatu yang menarik untuk dikaji. Oleh itu, dalam kertas ini dilaporkan kesan bersama Cr dan Pb terhadap pembentukan fasa, sifat elektrik dan suhu genting bahan  $(\text{Tl}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})\text{Sr}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{2-x}\text{Cr}_x)\text{O}_{7-\delta}$  ( $x = 0$  hingga 0.100). Peratus pecahan isi padu fasa, suhu genting mula  $T_c$  mula, suhu genting sifar  $T_c$  sifar, parameter kekisi  $a$  dan  $c$ , isi padu unit sel dan saiz hablur telah diukur dan dilaporkan dalam kertas ini. Suhu dan masa pemanasan optimum dalam pembentukan fasa Tl-1212 juga dilaporkan dalam kertas ini.

## BAHAN DAN KAEDAH

Bagi siri pertama, sampel dengan komposisi permulaan  $(\text{Tl}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})\text{Sr}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{2-x}\text{Cr}_x)\text{O}_{7-\delta}$  untuk  $x = 0, 0.015, 0.025, 0.050$  dan  $0.100$  disediakan dengan kaedah tindak balas keadaan pepejal menggunakan serbuk oksida logam berketulenan tinggi ( $> 99.99\%$ ) dengan tindak balas kimia seperti berikut:



Serbuk  $\text{Tl}_2\text{O}_3$ ,  $\text{PbO}$ ,  $\text{Sr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{CaO}$  dan  $\text{CuO}$  dengan nisbah stoikiometri 0.5: 0.5: 2: 1: 2-x: x seperti persamaan di atas dicampurkan dan dikisar menggunakan mortar untuk menghasilkan serbuk yang homogen. Serbuk dipeletkan dengan diameter 10 mm dan ketebalan 2 mm. Kemudian pelet dibalut dengan kerajang perak, untuk mengurangkan pemeluwapan talium semasa pemanasan. Pelet dipanaskan pada suhu 850 °C selama 5 jam dalam tiub kuarza tanpa aliran gas oksigen, diikuti dengan penyejukan dalam relau ke suhu bilik.

Siri kedua dan ketiga disediakan dengan kaedah pelopor. Dalam kaedah ini serbuk  $\text{PbO}$ ,  $\text{Sr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{CaO}$  dan  $\text{CuO}$  dikisar dan dipanaskan pada suhu 900 °C selama 24 jam. Bahan ini kemudian dikisar dan dipanaskan sekali lagi pada suhu dan tempoh yang sama. Selepas itu, serbuk  $\text{Tl}_2\text{O}_3$  dan  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  dimasukkan dengan amaun mengikut formula  $(\text{Tl}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})\text{Sr}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{2-x}\text{Cr}_x)\text{O}_{7-\delta}$  dan dipeletkan. Pelet kemudiannya dipanaskan pada dua suhu iaitu 950 dan 1000 °C dalam aliran gas oksigen pada kadar 10-15 cc/min selama 4 min. Ini diikuti dengan penyejukan dalam relau ke suhu bilik.

Kaedah pembelauan sinar-X (XRD) menggunakan difraktometer Bruker D8 dengan sumber  $\text{CuK}_\alpha$  ( $\lambda = 1.5418$  Å) antara  $2\theta = 2$  dan  $60^\circ$  digunakan untuk mengenal pasti fasa yang dihasilkan. Pengukuran rintangan elektrik (dc) melawan suhu dilakukan menggunakan kaedah penduga

empat titik dengan cat perak sebagai penyambung elektrik. Sistem kriogenik kitaran tertutup daripada CTI Cryogenics (Model 22) dan pengawal suhu dari Lake Shore (Model 330). Sumber arus tetap antara 1 dan 100 mA digunakan sepanjang pengukuran. Suhu genting mula,  $T_{c\text{ mula}}$  didefinisikan sebagai suhu kerana terdapat penurunan mendadak pada rintangan dan suhu genting sifar,  $T_{c\text{ sifar}}$  ialah suhu apabila rintangan menjadi sifar.

#### KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN

Corak pembelauan sinar-X (XRD) bahan  $(\text{Ti}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})\text{Sr}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{2-x}\text{Cr}_x)\text{O}_{7-\delta}$  bagi sampel yang dipanaskan pada suhu 850 °C (5 jam) tanpa aliran gas oksigen ditunjukkan dalam Rajah 1. Corak bagi sampel yang dipanaskan pada suhu 950 °C ditunjukkan dalam Rajah 2 dan bagi suhu 1000 °C ditunjukkan dalam Rajah 3. Corak XRD menunjukkan bahawa kesemua sampel mempunyai fasa dominan Tl-1212. Kebanyakan sampel mempunyai beberapa puncak bendasing Tl-1201 dan  $\text{Ca}_2\text{PbO}_4$  (CPO). Ini mungkin disebabkan oleh bahan yang tidak bertindak balas lengkap. Puncak bagi  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  tidak dapat dikesan dalam semua sampel yang telah ditambah dengan Cr dan ini menunjukkan bahawa Cr telah memasuki sel unit Tl-1212. Umumnya, parameter kekisi dan isi padu unit sel berkurang dengan peningkatan Cr. Walau bagaimanapun, kehadiran Cr tidak memberi banyak kesan kepada puncak fasa dan struktur tetragonal sampel. Dengan kehadiran Cr dengan jejari ion kurang daripada 0.615 Å dan ion Cu dengan jejari purata 0.73 Å dijangkakan ion Cr menggantikan ion Cu yang lebih besar. Ini telah mengurangkan parameter kekisi pada kadar Cr yang rendah walaupun ia tidak menunjukkan perkadaran yang sistematik (Jadual 1). Amaun Cr yang sedikit dan terkawal membantu dalam pembentukan fasa Tl-1212. Secara umumnya, saiz hablur juga dijangka berkurang dengan penambahan Cr, tetapi diperhatikan saiz purata hablur yang dihitung daripada corak pembelauan sinar-X tidak menunjukkan perubahan yang sistematik. Ini mungkin kerana saiz hablur yang berskala nano telah berkumpul dengan pertambahan kandungan Cr.

Bersandarkan kepada jumlah keamatan puncak bagi setiap fasa pecahan isi padu sampel ditentukan melalui persamaan:

$$\Sigma I_{1212}(\%) = \frac{\Sigma I_{1212}}{\Sigma I_{1212} + \Sigma I_{1201} + \Sigma I_{CPO}} \times 100$$

$$\Sigma I_{1201}(\%) = \frac{\Sigma I_{1201}}{\Sigma I_{1212} + \Sigma I_{1201} + \Sigma I_{CPO}} \times 100$$

$$\Sigma I_{CPO}(\%) = \frac{\Sigma I_{CPO}}{\Sigma I_{1212} + \Sigma I_{1201} + \Sigma I_{CPO}} \times 100$$

dengan  $\Sigma I$  ialah jumlah keamatan puncak sesuatu fasa. Kesemua sampel menunjukkan fasa dominan Tl-1212

melalui peratusan fasa yang telah dihitung. Jadual 1 menunjukkan peratusan fasa Tl-1212, Tl-1201 dan CPO. Sampel yang mempunyai peratusan tertinggi fasa Tl-1212 bagi ketiga-tiga kumpulan sampel adalah  $x = 0.025$  (850 °C),  $x = 0$  (950 °C) dan  $x = 0.0$  (1000 °C) masing-masing sebanyak 93, 94 dan 81%. Walau bagaimanapun, pertambahan dan pengurangan peratusannya tidak mempunyai perkadaran yang sistematik. Ini disebabkan oleh dua faktor iaitu suhu meruap  $\text{Ti}_2\text{O}_3$  (717 °C) yang lebih rendah menyebabkan kehilangan Ti yang tinggi dan masa pemanasan yang singkat menyebabkan tindak balas tidak lengkap. Diperhatikan juga, sampel dengan peratusan tertinggi ini tidak semestinya menunjukkan  $T_{c\text{ mula}}$  dan  $T_{c\text{ sifar}}$  yang tertinggi. Antara kemungkinan penyebabnya adalah kekurangan atau kecacatan oksigen pada sampel dan bahan di dalam sampel yang tidak homogen. Sampel boleh mempunyai peratusan fasa Tl-1212 yang tinggi tetapi suhu gentingnya tidak semesti tinggi. Ini kerana kekurangan atau kecacatan oksigen pada kekisi dan pendopan lampau oleh Cr boleh menurunkan kepekatan cas pembawa dan seterusnya menurunkan suhu genting (Li et al. 1995; Sheng et al. 1991).

Saiz hablur atau kristalit,  $D$  telah dihitung menggunakan persamaan Debye-Scherrer,  $D_{XRD} = \frac{0.941\lambda}{W \cos\theta}$ , dengan  $W$  ialah lebar puncak maksimum penuh pada separuh keamatan,  $\lambda$  ialah panjang gelombang sinar-X yang digunakan dan  $\theta$  ialah sudut pembelauan. Keputusan menunjukkan tiada perubahan sistematik pada saiz hablur (Jadual 1).

Sampel dengan  $x = 0.050$  yang dipanaskan pada suhu 850 °C selama 5 jam menunjukkan  $T_{c\text{ mula}}$  tertinggi dalam kumpulan yang sama iaitu 95 K (Rajah 4). Bagi kumpulan sampel yang dipanaskan pada suhu 950 °C selama 4 min sampel  $x = 0.025$  mencatatkan  $T_{c\text{ mula}}$  tertinggi iaitu pada 94 K (Rajah 5). Manakala sampel  $x = 0.100$  yang dipanaskan pada suhu 1000 °C selama 15 min mempunyai  $T_{c\text{ mula}}$  tertinggi iaitu 102 K (Rajah 6).

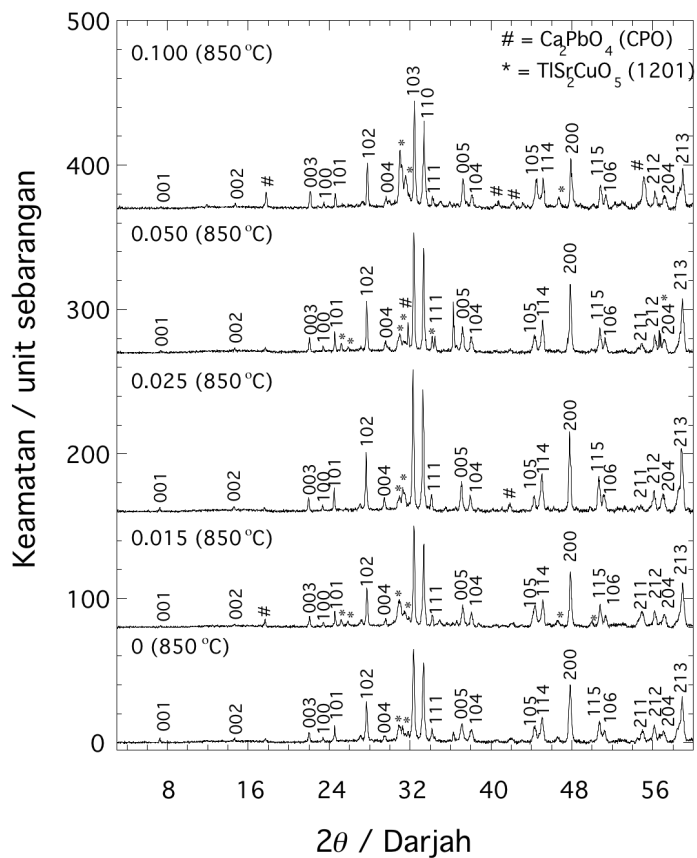
Jadual 1 juga menunjukkan keputusan pengukuran rintangan elektrik terhadap suhu bagi  $(\text{Ti}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})\text{Sr}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{2-x}\text{Cr}_x)\text{O}_{7-\delta}$  untuk sampel  $x = 0, 0.015, 0.025, 0.050$  dan  $0.100$  bagi semua sampel. Kesemua sampel mempamerkan sifat seperti logam di atas suhu genting.  $T_{c\text{ sifar}}$  tertinggi bagi kumpulan sampel yang dipanaskan pada suhu 850 °C (5 jam), 950 °C (4 min) dan 1000 °C (4 min) masing-masing adalah 80 K ( $x = 0.015$ ), 67 K ( $x = 0$  dan  $0.015$ ) dan 89 K ( $x = 0.100$ ). Keputusan pengukuran rintangan elektrik melawan suhu menunjukkan suhu genting sifar tertinggi ialah 89 K, pada suhu pemanasan 1000 °C (4 min) dan suhu genting mula,  $T_{c\text{ mula}}$  bertambah secara beransur-ansur pada apabila Cr ditambah dalam sampel. Perbezaan suhu genting permulaan ( $\Delta T$ ) juga semakin berkurang bagi kumpulan sampel ini juga (1000 °C).

Untuk mengkaji kesan saiz hablur terhadap sifat elektrik bahan ini, terbitan rintangan terhadap suhu  $dR/dT$  diplotkan melawan suhu (Rajah 4 hingga 6), dua puncak pada lengkung  $dR/dT$  diperhatikan dalam kebanyakan sampel. Puncak pertama  $dR/dT$  iaitu  $T_{p1}$ , menandakan kesuperkonduksian dalam butiran atau intrabutiran. Puncak kedua,  $T_{p2}$  menunjukkan suhu superarus mula mengalir di antara butiran melalui kesan proksimiti (Sahoo & Behera 2013). Penurunan  $T_{p2}$  dan pelebaran  $DT_p$  mencerminkan kesan bendasing (Rajah 7) yang juga diperhatikan dalam corak XRD bagi sampel yang dipanaskan pada suhu 850 dan 950 °C. Sampel  $x = 0.100$  yang dipanaskan pada suhu 850 °C menunjukkan  $T_{p1}$  pada 86 K dan  $T_{p2}$  pada 76 K. Ini menunjukkan bahawa pada 86 K, kesuperkonduksian intrabutiran berlaku dan pada suhu 76 K bahan menjadi superkonduktor pukal kerana berlaku aliran superarus

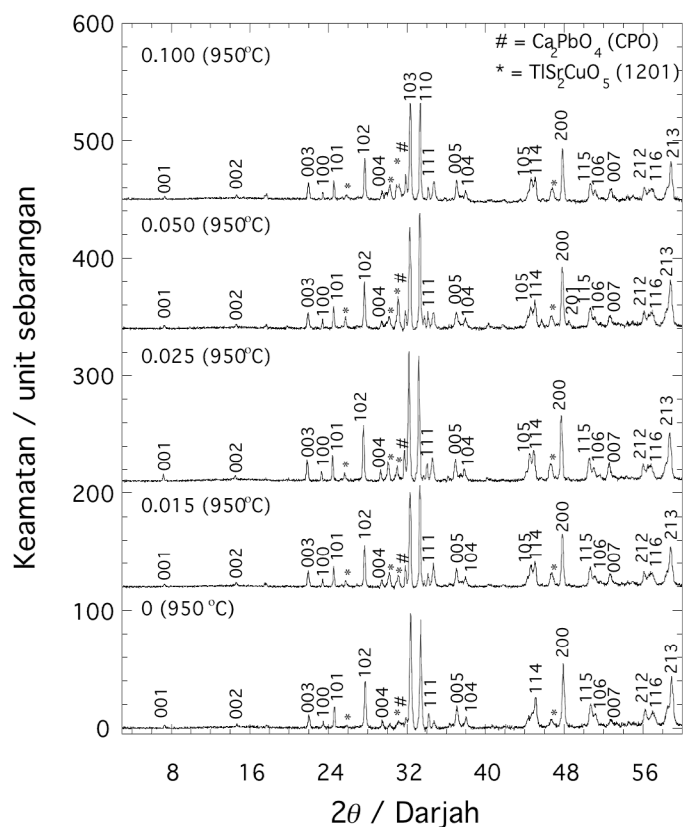
antara butiran. Fasa bendasing ini mungkin berada pada sempadan butiran dan keseluruhan sampel menjadi superkonduktor hanya kerana kesan proksimiti ketika suhu diturunkan ke  $T_{p2}$ . Bagi sampel yang dipanaskan pada 1000 °C ( $x = 0.015 - 0.100$ ) didapati kedua-dua puncak pada  $dR/dT$  adalah hampir sama iaitu  $T_{p1} \sim T_{p2}$ . Puncaknya adalah lebih lebar kerana ia mengandungi dua puncak  $T_{p1}$  dan  $T_{p2}$  yang berdekatan (Rajah 7). Ini menunjukkan bahawa kesuperkonduksian dalam butiran (intrabutiran) dan antara butiran berlaku pada suhu yang hampir sama. Keputusan ini menunjukkan bahawa gandingan antara butiran yang kuat serta sempadan butiran tidak dipengaruhi oleh bendasing dalam sampel yang dipanaskan pada 1000 °C. Ini disebabkan oleh suhu pemanasan yang tinggi (1000 °C) telah membantu meningkatkan hubungan antara butiran.

JADUAL 1.  $T_{c\text{ mula}}$ ,  $T_{c\text{ sifar}}$ ,  $\Delta T$ , parameter kekisi  $a$  dan  $c$ , isi padu unit sel, pecahan isi padu fasa Tl-1212, Tl-1201 dan CPO, dan saiz hablur bagi sampel yang dipanaskan pada suhu  $T = 850$  °C selama 5 jam tanpa aliran oksigen, suhu  $T = 950$  °C dan  $T = 1000$  °C selama 4 min dalam aliran gas oksigen

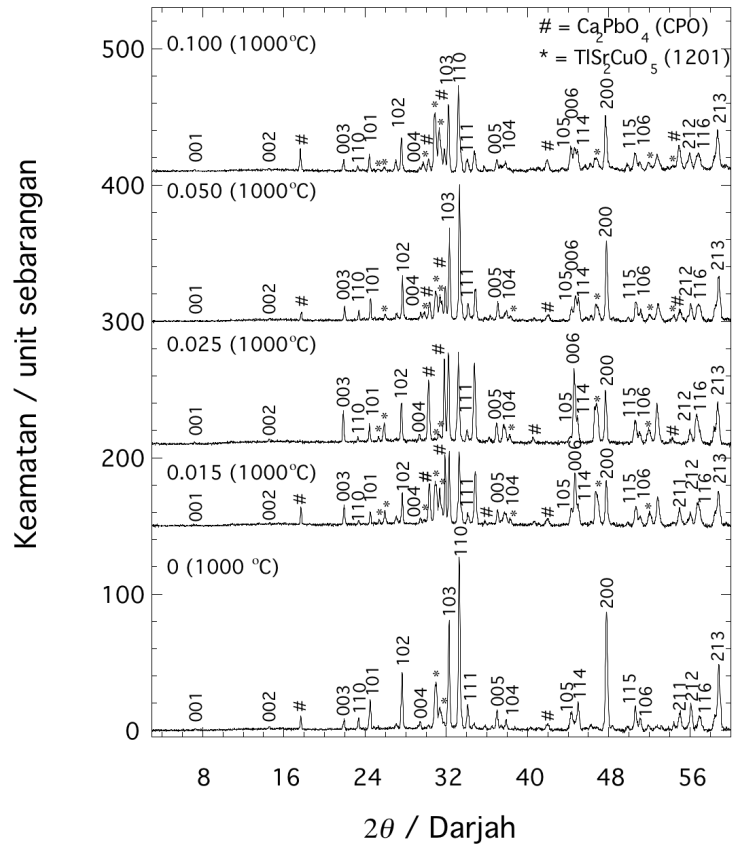
| $x$           | $T_{c\text{ mula}}$ | $T_{c\text{ sifar}}$ | $\Delta T$ | $a / \text{Å}$ | $c / \text{Å}$ | $a/c$   | $V / \text{Å}^3$ | $I_{1212} / \%$ | $I_{1201} / \%$ | $I_{\text{CPO}} / \%$ | Saiz hablur/<br>nm |
|---------------|---------------------|----------------------|------------|----------------|----------------|---------|------------------|-----------------|-----------------|-----------------------|--------------------|
| $T = 850$ °C  |                     |                      |            |                |                |         |                  |                 |                 |                       |                    |
| 0             | 93                  | 76                   | 17         | 3.8047         | 12.128         | 0.31372 | 175.56           | 79              | 17              | 4                     | 40                 |
| 0.015         | 93                  | 80                   | 13         | 3.8036         | 12.090         | 0.31460 | 174.92           | 86              | 11              | 3                     | 48                 |
| 0.025         | 92                  | 70                   | 22         | 3.8082         | 12.134         | 0.31385 | 175.97           | 93              | 5               | 2                     | 51                 |
| 0.050         | 95                  | 73                   | 22         | 3.8039         | 12.094         | 0.31453 | 174.99           | 87              | 6               | 7                     | 49                 |
| 0.100         | 92                  | 70                   | 22         | 3.8015         | 12.071         | 0.31492 | 174.44           | 77              | 19              | 4                     | 49                 |
| $T = 950$ °C  |                     |                      |            |                |                |         |                  |                 |                 |                       |                    |
| 0             | 88                  | 67                   | 21         | 3.8015         | 12.071         | 0.31492 | 174.44           | 94              | 3               | 3                     | 40                 |
| 0.015         | 93                  | 67                   | 26         | 3.8052         | 12.144         | 0.31334 | 175.84           | 88              | 6               | 6                     | 41                 |
| 0.025         | 94                  | 64                   | 30         | 3.8116         | 12.194         | 0.31257 | 177.16           | 87              | 6               | 7                     | 42                 |
| 0.050         | 86                  | 63                   | 23         | 3.8083         | 12.151         | 0.31341 | 176.23           | 83              | 11              | 6                     | 37                 |
| 0.100         | 92                  | 63                   | 29         | 3.8040         | 12.134         | 0.31349 | 175.59           | 86              | 6               | 8                     | 44                 |
| $T = 1000$ °C |                     |                      |            |                |                |         |                  |                 |                 |                       |                    |
| 0             | 91                  | 71                   | 20         | 3.8053         | 12.158         | 0.31300 | 176.04           | 81              | 16              | 3                     | 49                 |
| 0.015         | 92                  | 85                   | 7          | 3.8087         | 12.153         | 0.31340 | 176.29           | 63              | 14              | 22                    | 47                 |
| 0.025         | 89                  | 79                   | 10         | 3.8147         | 12.178         | 0.31324 | 177.21           | 75              | 2               | 23                    | 46                 |
| 0.050         | 98                  | 84                   | 14         | 3.8069         | 12.137         | 0.31365 | 175.90           | 79              | 11              | 11                    | 51                 |
| 0.100         | 102                 | 89                   | 13         | 3.8156         | 12.176         | 0.31336 | 177.27           | 66              | 25              | 9                     | 42                 |



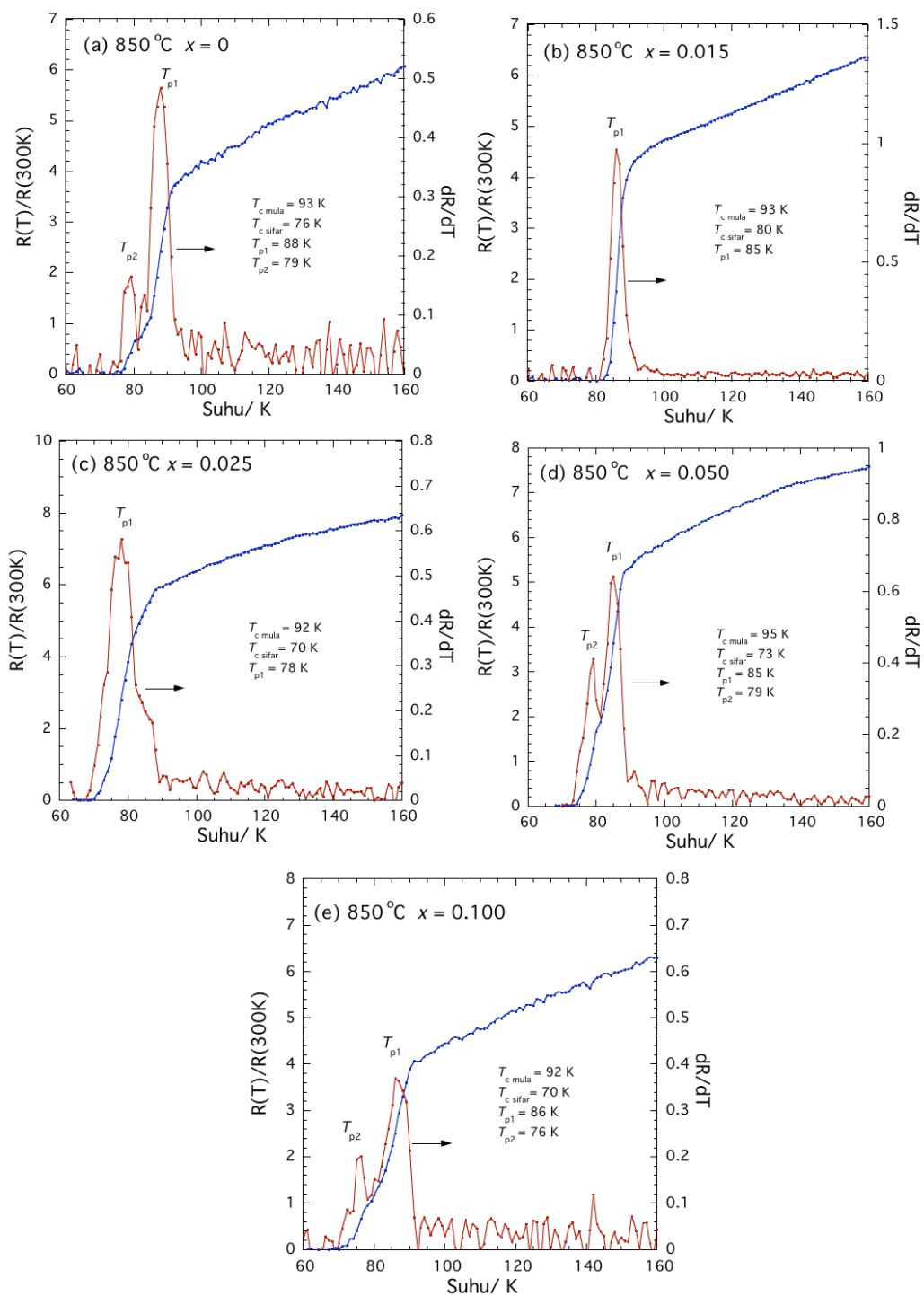
RAJAH 1. Corak pembelauan sinar-X  $(\text{Ti}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})\text{Sr}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{2-x}\text{Cr}_x)\text{O}_7$  bagi sampel  $x = 0$  hingga 0.100 yang dipanaskan pada  $850^\circ\text{C}$  selama 5 jam dalam kerajang perak



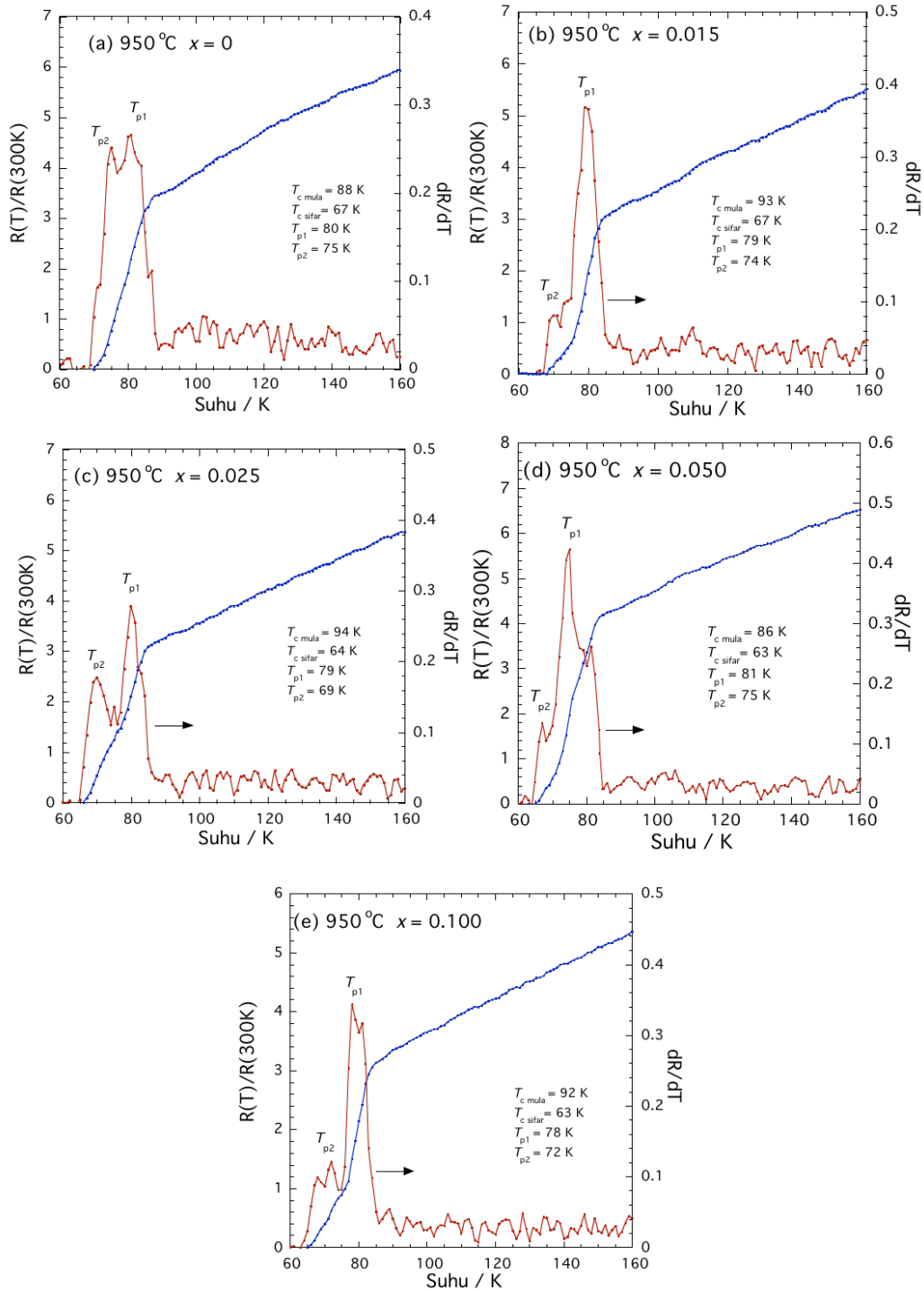
RAJAH 2. Corak pembelauan sinar-X  $(\text{Ti}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})\text{Sr}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{2-x}\text{Cr}_x)\text{O}_7$  bagi sampel  $x = 0$  hingga 0.100 yang dipanaskan pada  $950^\circ\text{C}$  selama 4 min



RAJAH 3. Corak pembelauan sinar-X  $(\text{Tl}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})\text{Sr}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{2-x}\text{Cr}_x)\text{O}_7$  bagi sampel  $x = 0$  hingga  $0.100$  yang dipanaskan pada  $1000^\circ\text{C}$  selama 4 min

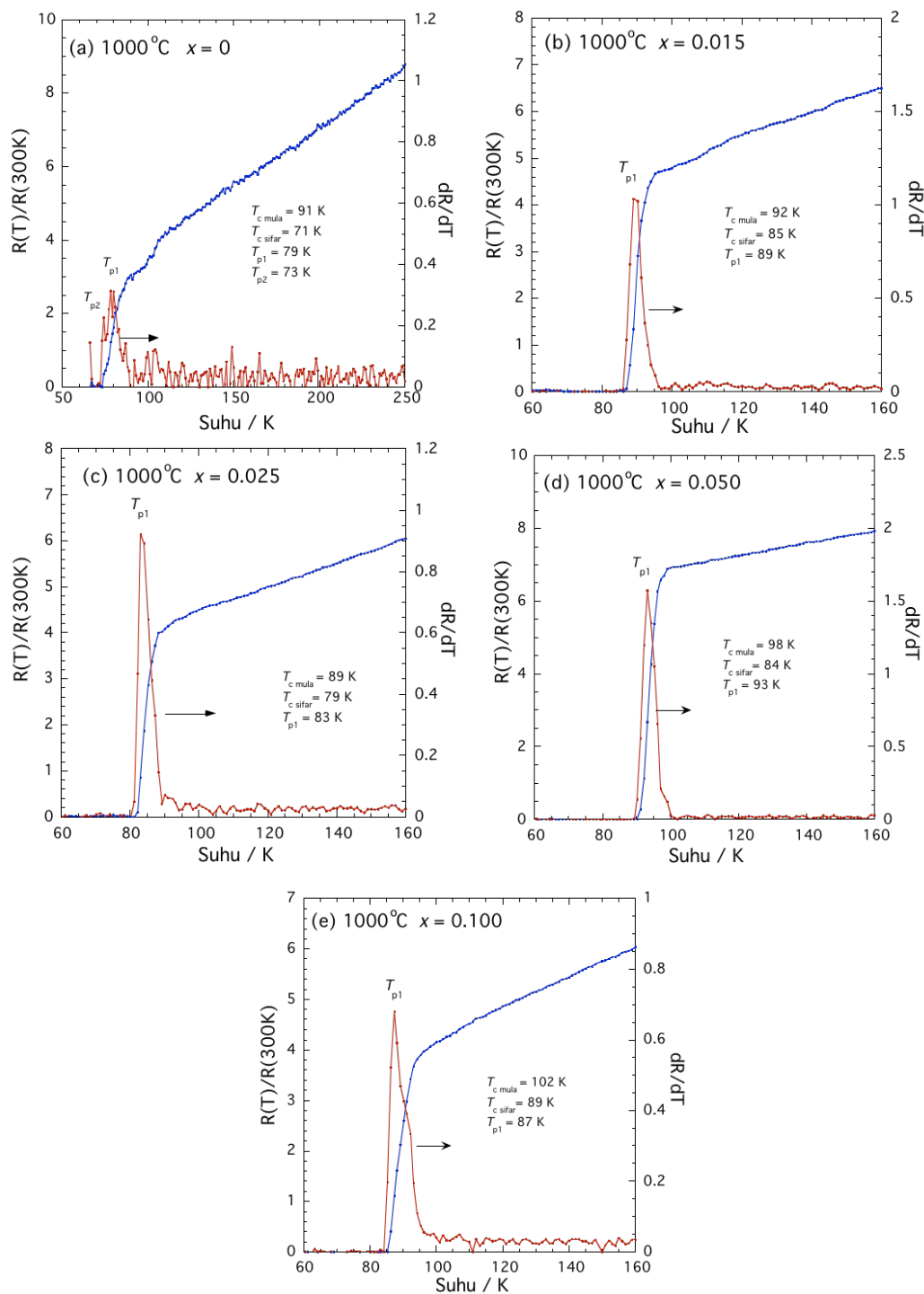


RAJAH 4. Rintangan elektrik dan  $dR/dT$  melawan suhu  $(\text{Ti}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})\text{Sr}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{2-x}\text{Cr}_x)\text{O}$  bagi sampel  $x = 0$  hingga  $0.100$  yang dipanaskan pada  $850 \text{ }^\circ\text{C}$  selama  $5 \text{ jam}$

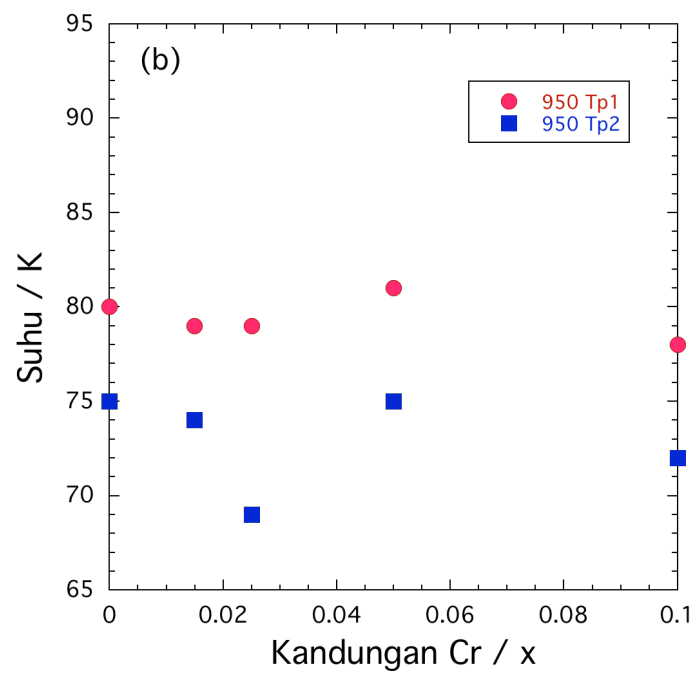
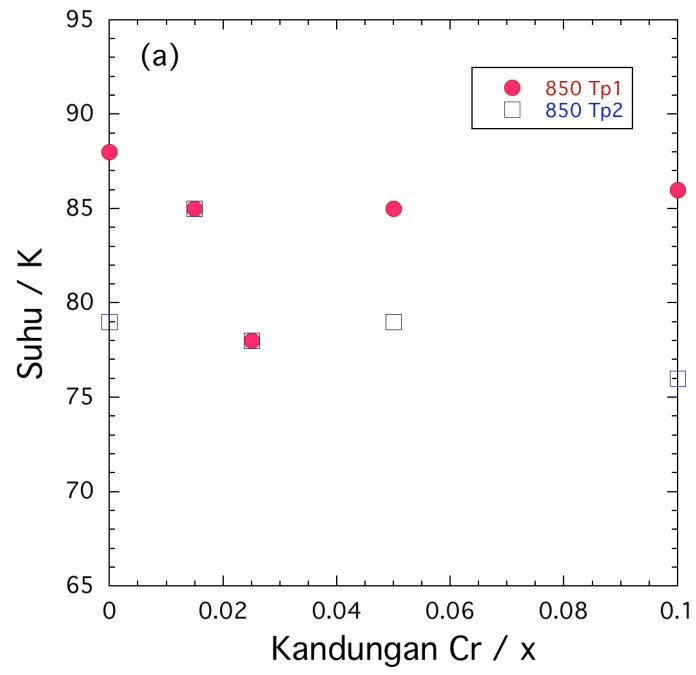


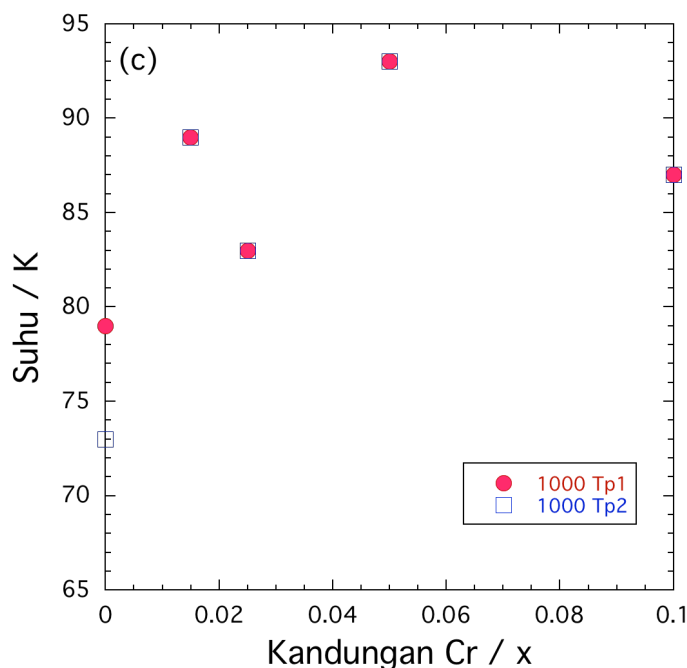
RAJAH 5. Rintangan elektrik dan  $dR/dT$  melawan suhu  $(\text{Ti}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})\text{Sr}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{2-x}\text{Cr}_x)\text{O}_7$  bagi sampel  $x = 0.0$  hingga  $0.100$  yang dipanaskan pada  $950 \text{ }^\circ\text{C}$  selama  $4 \text{ min}$





RAJAH 6. Rintangan elektrik dan  $dR/dT$  melawan suhu  $(\text{Ti}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})\text{Sr}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{2-x}\text{Cr}_x)\text{O}_7$  bagi sampel  $x = 0.0$  hingga  $0.100$  yang dipanaskan pada  $1000 \text{ }^\circ\text{C}$  selama  $4 \text{ min}$





RAJAH 7.  $T_{p1}$  dan  $T_{p2}$  melawan kandungan Cr bagi sampel yang dipanaskan pada suhu (a) 50 °C, (b) 950 °C dan (c) 1000 °C

#### KESIMPULAN

Pengukuran rintangan elektrik melawan suhu menunjukkan  $(\text{Tl}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})\text{Sr}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{2-x}\text{Cr}_x)\text{O}_{7-\delta}$  ( $x = 0$  hingga 0.100) mempunyai sifat kesuperkonduksian pada tiga suhu pemanasan berbeza.  $T_{c\text{mula}}$  sampel yang disediakan pada 850 °C berada di antara 95 dan 92 K. Sampel yang disediakan pada suhu 950 °C menunjukkan  $T_{c\text{mula}}$  di antara 86 dan 94 K. Sampel yang dipanaskan pada suhu 1000 °C pula menunjukkan  $T_{c\text{mula}}$  di antara 89 hingga 102 K. Kesemua sampel menunjukkan fasa dominan Tl-1212. Penambahan Cr ke dalam sampel memberi kesan kepada  $T_{c\text{mula}}$  serta peratusan isi padu fasa Tl-1212. Hasil kajian ini menunjukkan suhu pemanasan 950 °C selama 4 min dalam aliran oksigen memberikan fasa Tl-1212 tertinggi (94 %,  $x = 0$ ) dan sampel yang dipanaskan pada suhu 1000 °C dengan  $x = 0.1$  menunjukkan  $T_{c\text{mula}}$  tertinggi (102 K) walaupun fasa Tl-1212 hanya 66%. Sampel siri ini juga (1000 °C) menunjukkan  $T_{p1} = T_{p2}$  dan ini menandakan superarus antara butiran dan intrabutiran berlaku pada

suhu yang sama. Ini menunjukkan pemanasan pada suhu yang tinggi meningkatkan ikatan antara butiran. Kajian lanjutan yang dicadangkan termasuklah mengenal pasti kaedah penyediaan optima bahan Tl-1212. Di samping itu, kajian lanjut dengan amalan Cr yang lebih tinggi ( $x > 0.100$ ) untuk meningkatkan lagi suhu genting boleh dijalankan pada masa hadapan.

#### PENGHARGAAN

Penulis berterima kasih kepada Kementerian Pengajian Tinggi Malaysia dan Universiti Kebangsaan Malaysia kerana membiayai penyelidikan ini melalui Geran FRGS/1/2017/STG02/UKM/01/1.

#### RUJUKAN

Abd-Shukor, R. & Azah Nik Jaafar, A. 1999. Formation and superconductivity of Pr and Nd-substituted Tl-1212 phase  $\text{Tl}_{0.85}\text{Cr}_{0.15}\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_7$ . *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* 10(9): 677-681.

- Akimov, A.I., Ksenofontov, V., Lebedev, S.A. & Tkachenka, T.M. 2006. Effect of fluorine and cerium substitutions on the properties of the  $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CaCu}_{1.98}\text{Fe}_{0.02}\text{O}_8$  superconductor. *Physica C: Superconductivity* 443(1-2): 29-32.
- Al-Sharabi, A. & Abd-Shukor, R. 2013. Formation of  $(\text{Tl}_{1-x}\text{Cr}_x)\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{7-d}$  (Tl-1212) superconducting phase using  $\text{Cr}_2\text{S}_3$ . *International Journal of Electrochemical Science* 8: 7825-7830.
- Bakar, I.P.A., Muhammad-Aizat, K., Nur-Akasyah, J., Mohd-Syahmi, M. S., Suib, N.R.M., Chiu, W.S. & Abd-Shukor, R. 2019. AC susceptibility and electrical properties of rare-earth- and alkali metal-substituted  $(\text{Tl}_{0.7}\text{M}_{0.3})\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_7$  with  $\text{M}=\text{Er, Gd, La, Na, K}$  and  $\text{Rb}$ . *Applied Physics A* 125(1): 21.
- Elmasroub, H.S. & Abd-Shukor, R. 2017. Superconducting properties of  $(\text{Tl}_{1-x}\text{Pb}_x)\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{7-d}$  ( $x=0.1-0.7$ ) prepared using nano-sized  $\text{PbO}$ . In *AIP Conference Proceedings*. AIP Publishing LLC. 1838(1): 020014.
- Gerashchenko, A.P., Verkhovskii, S.V., Mikhalev, K.N., Piskunov, Y.V. & Anan'ev, A.V. 1998. Effect of doping on the behavior of spin susceptibility of copper-oxygen layers in  $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8-d}$ . *Physics of Metals and Metallography* 86(1): 43-50.
- Hamadneh, I., Kuan, Y.W., Hui, L.T. & Abd-Shukor, R. 2006. Formation of  $\text{Tl}_{0.85}\text{Cr}_{0.15}\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{7-d}$  superconductor from ultrafine co-precipitated powders. *Materials Letters* 60(6): 734-736.
- Hassan, B., Alnakhliani, A., Muhammad, A. & Al-Hajji, M.A. 2016. Influence of  $\text{KMnO}_4$  substitution on the structural and transport properties of  $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{1-x}\text{R}_x)_2\text{O}_{d+6}$  system. *Journal of Physical Science* 27(3): 13-24.
- Hussain, S., Ali, J., Khan, N.A. & Raza, K.A. 2020. Effect of Cd intercalation on the superconducting properties of  $(\text{Cu}_{0.5-y}\text{K}_y\text{Tl}_{1-y})\text{Ba}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{3-x}\text{Cd}_x\text{O}_{10-d}$  ( $y=0, 0.25; x=0, 0.5, 1.0, 1.5, 2.0$ ) superconductors. *Journal of Alloys and Compounds* 817: 152697.
- Ibrahim, N., Yusof, M.M. & Salleh, F.M. 2009. Synthesis of  $\text{Tl}_{0.85}\text{Cr}_{0.15}\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{7-d}$  superconductor from coprecipitation Tl-free precursor. *Solid State Science and Technology* 17: 148-154.
- Ji, L., Gao, X., Ge, D., Xie, W., Wang, P., Zhao, X., Wang, Z., He, M., Zhang, X. & Li, W. 2012. The influence of  $\text{CeO}_2$  nano-dots decoration on substrates on flux pinning strength in  $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  thin films. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* 23(3): 8001505.
- Ledésert, M., Maignan, A., Chardon, J., Martin, C., Labbé, P., Hervieu, M. & Raveau, B. 1994. (Tl,Bi) $\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_7$  "1212" superconducting single crystal a structural and magnetic study. *Physica C: Superconductivity* 232(3-4): 387-395.
- Li, S. & Greenblatt, M. 1989. Preparation and superconducting properties of (Tl,Bi) $\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ . *Physica C: Superconductivity* 157(2): 365-369.
- Li, Y.F., Chmaissem, O. & Sheng, Z.Z. 1995. Crystal structure and  $T_c$  of 1212-type cuprate  $(\text{Tl, Cr})\text{Sr}_2(\text{Ca, Tl})\text{Cu}_2\text{O}_7$ . *Physica C: Superconductivity* 248(1-2): 42-48.
- Martin, C., Provost, J., Bourgault, D., Domengès, B., Michel, C., Hervieu, M. & Raveau, B. 1989. Structural peculiarities of the "1212" superconductor  $\text{Tl}_{0.5}\text{Pb}_{0.5}\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_7$ . *Physica C: Superconductivity* 157(3): 460-468.
- Muhammad-Aizat, K. & Abd-Shukor, R. 2018. Electrical properties and ac susceptibility of CdTe added  $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8-d}$  superconductor. *Sains Malaysiana* 47(7): 1579-1583.
- Mumtaz, M., Ali, L., Azeem, S., Ullah, S., Hussain, G., Rabbani, M.W., Jabbar, A. & Nadeem, K. 2016. Dielectric properties of  $(\text{Zn})_x/\text{CuTi-1223}$  nanoparticle-superconductor composites. *Journal of Advanced Ceramics* 5(2): 159-166.
- Ranjbar, M.G. & Abd-Shukor, R. 2014. Formation of Tl-1223 phase in Cr substituted  $(\text{Tl}_{1-x}\text{Cr}_x)\text{Ba}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{9-d}$  ( $x=0.3$  to  $0.9$ ) superconductor. *Ceramics International* 40(9): 13869-13872.
- Sahoo, M. & Behera, D. 2013. SCOPF analysis of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-d+x}\text{Cr}_2\text{O}_3$  superconductor composite. *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 74(7): 950-956.
- Sheng, Z.Z., Gu, D.X., Xin, Y., Pederson, D.O., Finger, L.W., Hadjiaicos, C.G. & Hazen, R.M. 1991. A new 1212-type phase: Cr-substituted  $\text{TlSr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_7$  with  $T_c$  up to about 110 K. *Modern Physics Letters B* 5(9): 635-642.
- Subramanian, M.A., Torardi, C.C., Gopalakrishnan, J., Gai, P.L., Calabrese, J.C., Askew, T.R., Flippen, R.B. & Sleight, A.W. 1988. Bulk superconductivity up to 122 K in the Tl-Pb-Sr-Ca-Cu-O system. *Science* 242(4876): 249-252.
- Wahlbeck, P.G., Peterson, D.E., Willis, J.O., Peterson, E.J., Coulter, J.Y., Phillips, D.S. & Salazar, K.V. 1996. Characterization of superconducting  $(\text{Tl, Bi})\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ . *Physica C: Superconductivity* 256(3-4): 358-364.
- E. Yusrianto & R. Abd-Shukor\*  
Department of Applied Physics  
Universiti Kebangsaan Malaysia  
43600 UKM Bangi, Selangor Darul Ehsan  
Malaysia
- A.N. Jannah  
Faculty of Applied Sciences  
Universiti Teknologi MARA  
Negeri Sembilan Branch, Kuala Pilah Campus  
72000 Kuala Pilah, Negeri Sembilan  
Malaysia
- \*Pengarang untuk surat-menyurat; email: ras@ukm.edu.my
- Diserahkan: 13 September 2020  
Diterima: 23 Oktober 2020