

# Pengaruh Waktu Proses Sintering pada Kawat Superkonduktor Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O dengan Selubung Ag Dopan MgO Menggunakan Metode Powder in Tube

## Effect of Sintering Time on Superconducting Wire Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O With Dopant MgO Sheated Ag Using Powder in Tube Method

Hariyati Lubis<sup>1</sup>, Agung Imaduddin<sup>2</sup>, Eddy Marlianto<sup>1</sup>, Pius Sebleku<sup>2</sup>, Eidi Sihombing<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Program Magister (S2) Ilmu Fisika, Fakultas MIPA-Universitas Sumatra Utara

<sup>2</sup>Pusat Penelitian Metalurgi dan Material – LIPI

<sup>3</sup>Ilmu Fisika, Fakultas MIPA-Universitas Negeri Medan

Received September, 2017, Accepted October, 2017

Telah dilakukan penelitian mengenai variasi waktu proses sintering pada kawat superkonduktor Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O dopan MgO dengan selubung Ag. Bahan-bahan yang digunakan ialah *Bismuth (III) Oksida*, *Timbal (IV) Oksida*, *Strontium Carbonate*, *Calcium Carbonate*, *Copper (II) Oksida* dan *Magnesium Oksida* dengan tingkat kemurnian tinggi. Proses sintering dalam furnace dilakukan pada suhu konstan selama 30 jam dan 9 jam lalu didinginkan dalam tungku. Hasil karakterisasi X-Ray Diffraction dan search match v1.10, sampel kawat superkonduktor monofilamen  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  dan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Ca}_{1.95}\text{Mg}_{0.05}\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  dengan variasi waktu sintering masing-masing 30 jam dan 9 jam memiliki nilai intensitas sebesar 993,77cts dan 902,86 cts. Penambahan waktu sintering pada sampel superkonduktor mengakibatkan penurunan fraksi volume 2223 dengan masing-masing nilai fraksi volume sebesar 60% dan 59%, hal ini menunjukkan adanya impuritas berupa senyawa CuO. Parameter kisi diperoleh yaitu Orthorhombic dengan  $a=5,347 \text{ \AA}$ ,  $b=5,416 \text{ \AA}$  dan  $c=30,67 \text{ \AA}$ . Hasil morfologi SEM menunjukkan permukaan homogenitas butir sampel terlihat cukup baik, dan terdistribusi secara acak. Pada sampel kawat superkonduktor monofilamen  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{1.95}\text{Mg}_{0.05}\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  dengan waktu sintering 30 jam menunjukkan  $T_{\text{onset}}=72 \text{ K}$  dan  $T_{\text{zero}}=33 \text{ K}$ . Sampel kawat superkonduktor monofilamen  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{1.95}\text{Mg}_{0.05}\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  dengan waktu sintering 9 jam menunjukkan  $T_{\text{onset}}=78 \text{ K}$  dan  $T_{\text{zero}}=58 \text{ K}$ .

*Variation of sintering time has been done in Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O superconducting wires dopant MgO using Ag-sheathed. The samples were prepared using highly pure powders of Bismuth (III) Oxide, Lead (IV) Oxide, Strontium Carbonate, Calcium Carbonate, Copper (II) Oxide and Magnesium Oxide. Sintered at a constant temperature for 30 h and 9 h then cooled in the furnace. The structure of the samples was studied by X-Ray Diffraction and search match v1.10. XRD patterns of  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  and  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Ca}_{1.95}\text{Mg}_{0.05}\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  monofilament superconducting wires using variation of sintering time for 30 h and 9 h have intensity values of 993.77cts and 902.86 cts. The addition of sintering time to superconductor samples resulted decrease in the volume fraction of 2223 with each volume fraction value of 60% and 59% indicating of impurity phases present CuO compounds. The Orthorhombic structure with the lattice constants are calculated as  $a = 5,347 \text{ \AA}$ ,  $b = 5,416 \text{ \AA}$ , and  $c = 30,67 \text{ \AA}$ . The surface morphology studied by SEM, show that surface homogeneity, each grain grows in random directions. For the prepared  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Ca}_{1.95}\text{Mg}_{0.05}\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  monofilament superconducting wires sample with 30 h, the onset  $T_c$  is at 72 K and the resistivity drops to zero at 33 K. Sample of  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{1.95}\text{Mg}_{0.05}\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  monofilament superconducting wires with 9 h, the onset  $T_c$  is at 78 K and the resistivity drops to zero at 58 K.*

**Keywords :** BPSCCO superconducting wire, Sheated Ag, Dopant MgO, Sintering time

## PENDAHULUAN

Superkonduktor  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{x-1}\text{Cu}_x\text{O}_{2x+4}$  dalam formula senyawa dengan  $x=1, 2, 3$  disebut dengan BSCCO fase 2201 ( $T_c=20$  K), BSCCO fase 2212 ( $T_c=80$  K) dan BSCCO fase 2223 ( $T_c=110$  K). Superkonduktor berbasis bismuth ini dianggap bahan yang paling menjanjikan, salah satu aplikasi superkonduktor yang paling menjanjikan pada bidang energi yakni kawat superkonduktor dimana penggunaannya di jaringan distribusi tenaga listrik (Sharma et al. 2013). Permasalahan yang ditemukan dalam superkonduktor berbasis bismuth ini adalah upaya peningkatan suhu kritis dan memperkecil tingkat kerapuhan materialnya. Karena itu, diupayakan cara untuk meningkatkan suhu kritis melalui berbagai variasi suhu pada saat pembentukan superkonduktor dan variasi proses pendinginan material superkonduktor ketika berada di dalam tungku pemanas (Abbas et al. 2012).

Selubung Ag biasanya dicampur dengan satu atau lebih logam lain untuk memperbaiki sifat mekanik kawat dan untuk mendapatkan sifat karakterisasi superkonduktor suhu tinggi di dalamnya (Hull. J, 2003; I. E. Chew, 2010). Stabilitas struktur diupayakan dengan cara mendoping material bahan superkonduktor dengan substitusi bahan Pb (Meretliev et al. 2000, Abbas, et al. 2015). Doping Pb dapat meningkatkan suhu kritis superkonduktor BSCCO berturut-turut sebesar 106,42 K dan 107 K (Mohammed, 2012, Roumie, 2012) karena memiliki sifat fisis dan kimia yang mirip dengan unsur Bi sehingga mampu mensubstitusi posisi Bi pada sistem kristal BSCCO. Efek penambahan MgO dapat meningkatkan proporsi fase Bi-2223 dan meningkatkan flux pinning (Lu et al. 2016) dopingan ini juga dapat meningkatkan suhu kritis dan memperbaiki kerapuhan superkonduktor (Hermiz et al. 2014).

Suhu sintering optimal adalah sekitar  $845^\circ\text{C}$ , yang merupakan nilai kepadatan tertinggi dan fraksi volume tertinggi Bi-2223 berdasarkan hasil XRD. Selain itu, hasil XRD menunjukkan bahwa dengan meningkatnya suhu sintering hingga  $845^\circ\text{C}$ , fraksi fase Bi-2212 menurun. Hasil SEM menunjukkan bahwa morfologi permukaan sampel ditingkatkan dengan peningkatan temperatur sintering sampai  $845^\circ\text{C}$ . Diketahui bahwa peningkatan suhu sintering efektif dalam mengontrol butiran morfologi dan grains coupling untuk meningkatkan sifat superkonduktor seperti  $T_c$ ,  $J_c$  dan  $F_p$  (Sharma et al.

2013). Pada penelitian Hamadneh (2006) didapatkan nilai fraksi volume pada Bi(Pb)-2223 dengan suhu sintering  $850^\circ\text{C}$  dan variasi waktu 24, 48, dan 100 jam berturut-turut sebesar 97; 97,5 dan 98,7%. Metode *Powder-in-Tube* (PIT) digunakan pada bidang manufaktur kawat Bi-2223 dikarenakan memiliki struktur laminasi yang mengandung superkonduktor.

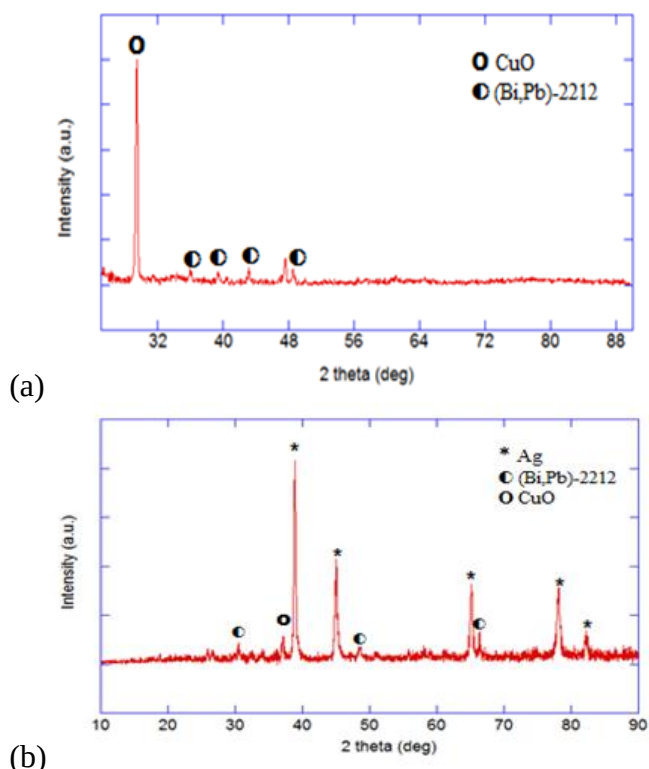
## METODOLOGI

Bahan-bahan yang digunakan dalam sintesis pada kawat superkonduktor monofilamen  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{MgO}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.00, 0.05$ ) ialah Bismuth (III) Oksida PA 98%, Timbal (IV) Oksida PA 97%, Strontium Carbonate PA 96%, Calcium Carbonate PA 98%, Copper (II) Oksida PA 99% dan Magnesium Oksida PA 99%. Bahan-bahan tersebut ditimbang sesuai perhitungan stoikiometri ( $x=0.00, 0.05$ ). Billet mono-filamen awal dengan diameter 8 mm ini kemudian di rolling hingga diameter 6 mm. Pada penelitian ini menggunakan metode PIT yang biasa digunakan untuk fabrikasi kabel dan kaset. Metode ini melibatkan prosedur sederhana yaitu mencampur semua bahan awal, packing serbuk dalam tabung logam, dan sintering. Keuntungan utama dari metode ini ialah mampu membawa kerapatan arus kritis tinggi dan mampu menghilangkan cacat akibat selubung (Serkan, 2008). Proses rekristalisasi selanjutnya di sintering dalam furnace pada suhu konstan  $850^\circ\text{C}$  selama 30 dan 9 jam lalu didinginkan dalam tungku. Pengujian terhadap faktor koreksi hasil pengukuran resistivitas ( $\rho$ ) dan rapat arus ( $J$ ) dengan metode four point probe menggunakan Cryogenic (Cryotron FR Oxford), karakterisasi sifat struktur dengan menggunakan X-Ray Diffraction (XRD Rigaku Mini Flex 600), dan untuk menyelidiki permukaan mikrostruktur sampel menggunakan Scanning Electron Microstructure (SEM JEOL type JSM-6390A).

## HASIL DAN PEMBAHASAN

Gambar 1(a) adalah sampel kawat superkonduktor monofilamen BPSCCO Dopan MgO dengan perlakuan sintering 30 jam, gambar tersebut menunjukkan bahwa terjadinya pembentukan fasa (Bi,Pb)-2223, (Bi,Pb)-2212, dan CuO. Fasa (Bi,Pb)-2223 optimum pada sudut  $2\theta=47,64^\circ$  dengan intensitas sebesar 161,99 cts, adapun fasa (Bi,Pb)-2212 optimum pada sudut  $2\theta=33,46^\circ$  dengan

intensitas sebesar 102,80 cts. Fasa CuO terdapat pada  $2\theta=29,26^\circ$  dengan intensitas 993,77 cts. Fasa Ag terdapat pada sudut  $2\theta=38,03^\circ$  dengan intensitas 93,46 cts.



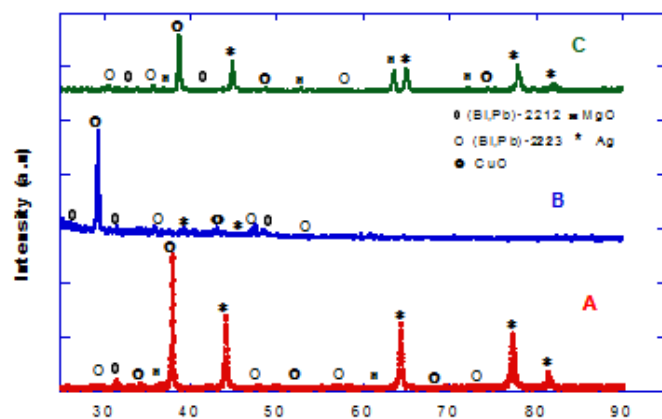
Gambar 1 Pola Difraksi Sampel Kawat Superkonduktor Monofilamen (A).B(Pb,Mg)SCCO Sintering 30 Jam dan (B) B(Pb,Mg)SCCO Sintering 9 Jam

Gambar 2(B) menunjukkan sampel kawat superkonduktor monofilamen BPSCCO dopan MgO dengan perlakuan sintering 9 jam, gambar tersebut menunjukkan bahwa terjadinya pembentukan fasa (Bi,Pb)-2223, (Bi,Pb)-2212, dan CuO. Fasa (Bi,Pb)-2223 optimum pada sudut  $2\theta=55,06^\circ$  dengan intensitas sebesar 35,14 cts adapun fasa (Bi,Pb)-2212 optimum pada sudut  $2\theta=29,08^\circ$  dengan intensitas sebesar 5,41 cts. Fasa CuO terdapat pada  $2\theta=38,72^\circ$  dengan intensitas 902,86 cts. fasa Ag terdapat pada sudut  $2\theta=44,92^\circ$  dengan intensitas 540,57 cts. Fasa CuO terbentuk akibat terjadinya dekomposisi fasa  $\text{Bi}_2\text{CuO}_4$  saat proses kalsinasi diatas suhu  $750^\circ\text{C}$  (Darsono, 2015). Secara umum, pola difraksi pada Gambar 2 untuk A, B dan C tidak mengalami perubahan yang cukup signifikan, masing-masing memiliki nilai intensitas sebesar 990,32 ; 993,77 dan 902,86 cts. Struktur kristal sampel yakni Orthorhombic dengan parameter kisi  $a=5,347 \text{ \AA}$ ,  $b=5,416 \text{ \AA}$  dan  $c=30,67 \text{ \AA}$ . Adapun untuk mengetahui nilai fraksi volume Bi-2223 dan

Bi-2212 pada sampel dapat digunakan Pers. (1) dan (2).

$$\text{Bi} - 2223 (\%) = \frac{\sum I_{2223}}{\sum I_{2223} + \sum I_{2212}} \times 100\% \quad (1)$$

$$\text{Bi} - 2212 (\%) = \frac{\sum I_{2212}}{\sum I_{2223} + \sum I_{2212}} \times 100\% \quad (2)$$



Gambar 2 Pola difraksi sampel kawat superkonduktor monofilamen (A) BPSCCO, (B) B(Pb,Mg)SCCO Sintering 30 jam, (C) B(Pb,Mg)SCCO Sintering 9 jam

Tabel 1 dan 2 menunjukkan perbandingan fraksi volume pada sampel kawat superkonduktor monofilamen BPSCCO dan B(Pb,Mg)SCCO dengan perlakuan sintering 9 jam dan 30 jam. Akibat dari terbentuknya fasa impuritas ini dapat mengurangi temperatur kritis dari sampel (Mohammed, 2012).

Tabel 1 Perbandingan Fraksi Volume Sampel BPSCCO

| Sampel       | Suhu Proses Sintering ( $^\circ\text{C}$ ) | Waktu Proses Sintering (jam) | Fraksi Volume (%) |         |
|--------------|--------------------------------------------|------------------------------|-------------------|---------|
|              |                                            |                              | Bi-2223           | Bi-2212 |
| BPSCCO       | 850                                        | 24                           | 26                | 74      |
| B(Pb,Mg)SCCO | 850                                        | 30                           | 40                | 60      |
| B(Pb,Mg)SCCO | 850                                        | 9                            | 41                | 59      |

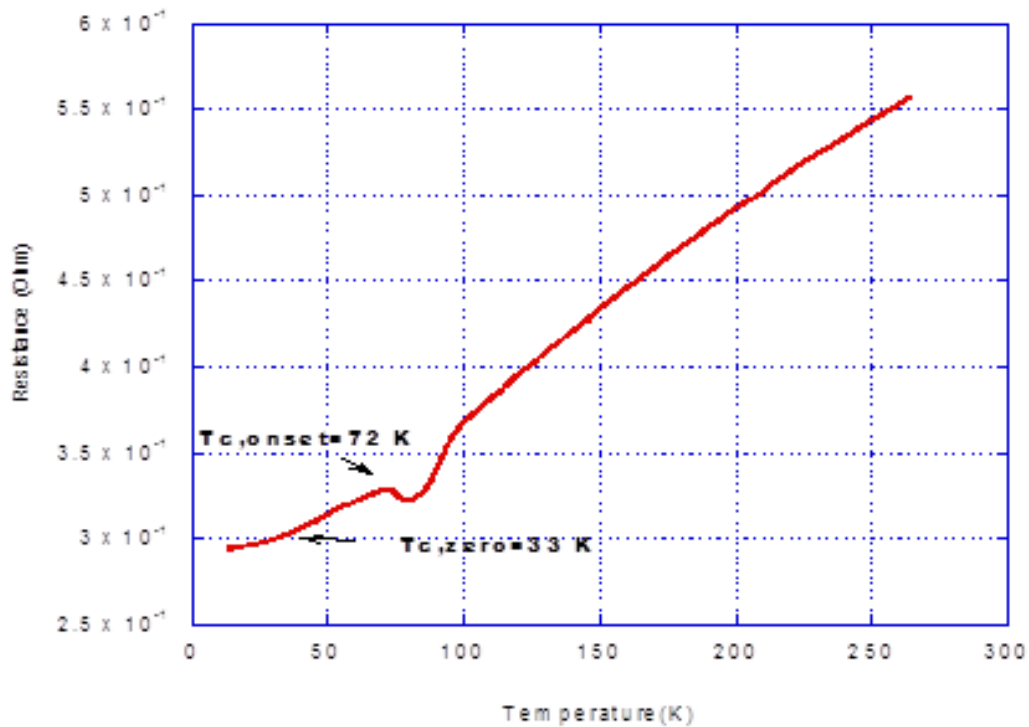
Tabel 2 Perbandingan ukuran kristal sampel BPSCCO dan B(Pb,Mg)SCCO

| Sampel       | Suhu Proses Sintering ( $^\circ\text{C}$ ) | Waktu Proses Sintering (jam) | Ukuran Kristal (nm) |
|--------------|--------------------------------------------|------------------------------|---------------------|
| BPSCCO       | 850                                        | 24                           | 546,22              |
| B(Pb,Mg)SCCO | 850                                        | 30                           | 83,53               |
| B(Pb,Mg)SCCO | 850                                        | 9                            | 237,98              |

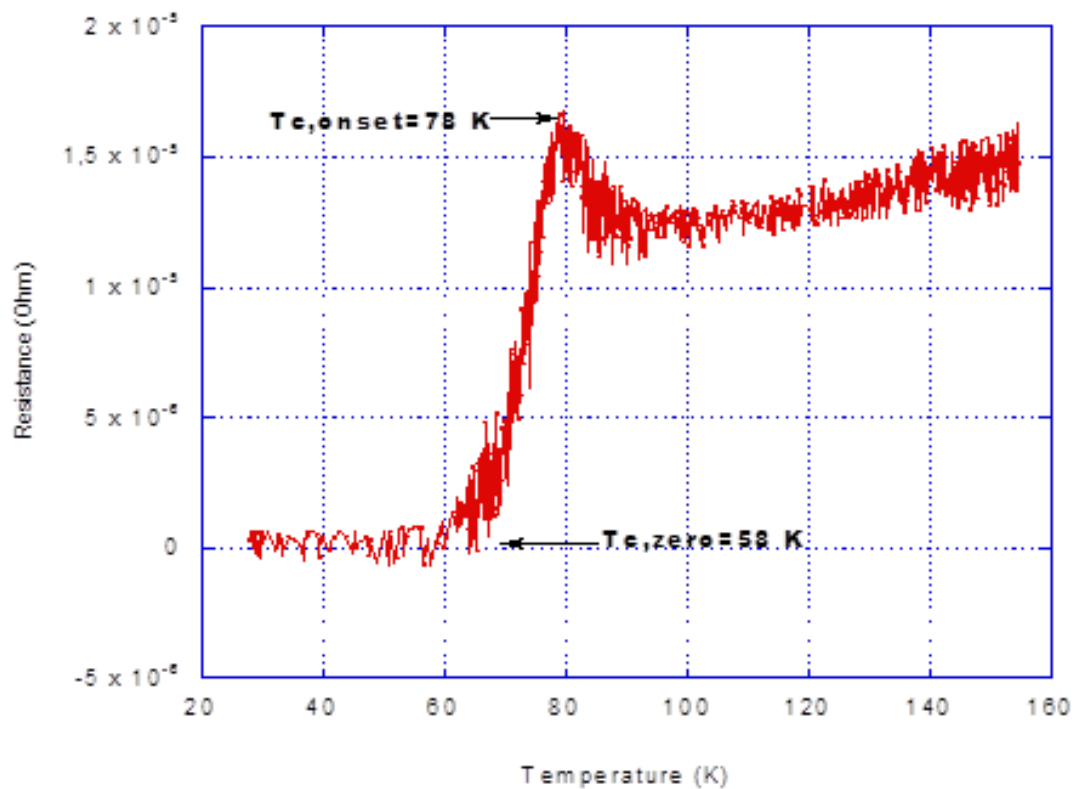
Gambar 3 menunjukan hasil pengujian resistivitas sampel kawat superkonduktor monofilament  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{1.95}\text{Mg}_{0.05}\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  selubung tabung Ag menggunakan Cryogenic Magnet. Gambar tersebut merupakan hasil identifikasi resistivitas

sampel BPSCCO. Dopan MgO diameter 6 mm dengan waktu sintering 30 Jam menunjukkan  $T_{c\text{onset}}=72$  K dan  $T_{c\text{zero}}=33$  K, dan pada sampel dengan waktu sintering 9 jam menunjukkan

$T_{c\text{onset}}=78$  K dan  $T_{c\text{zero}}=58$  K. Hal ini dikarenakan masih banyak terdapat fasa impuritas pada sampel (Darsono, 2015).

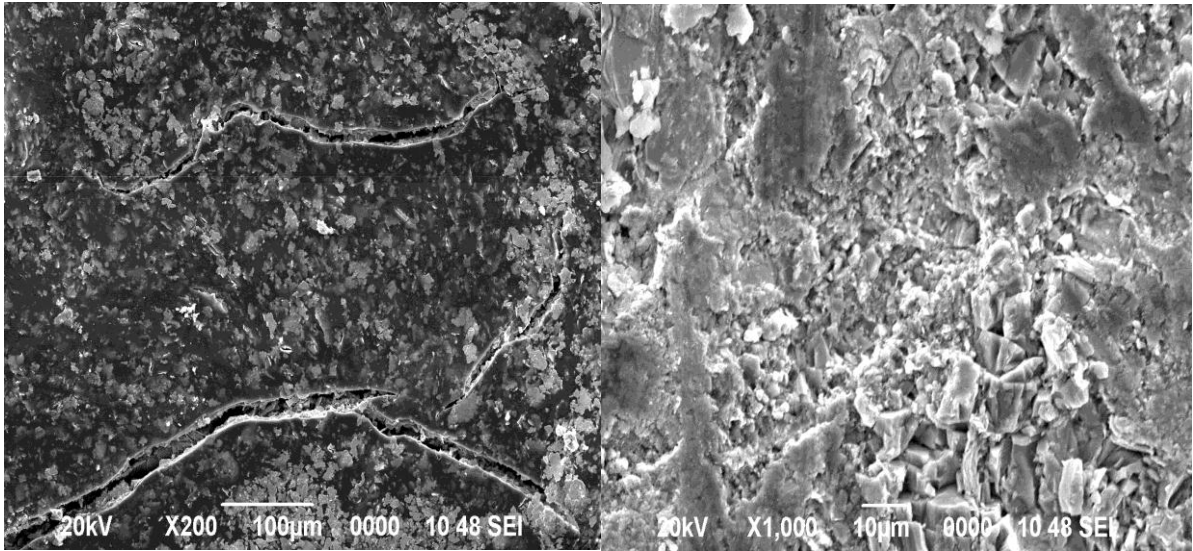


(a)

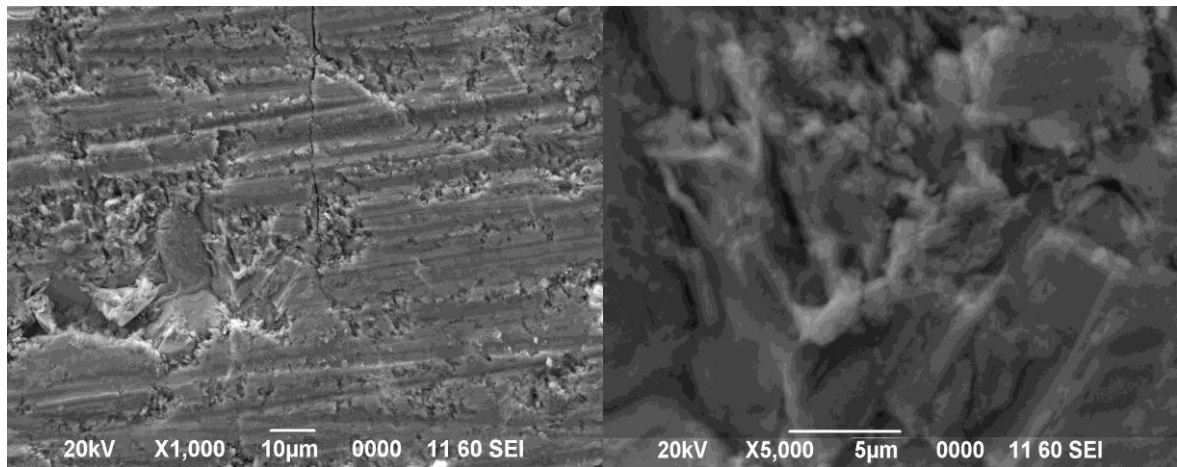


(b)

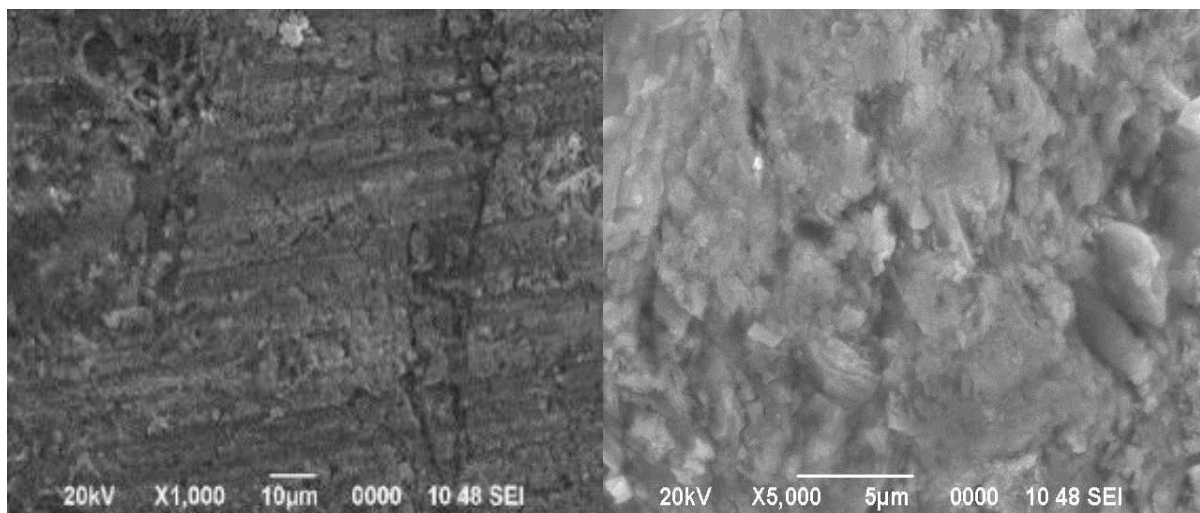
Gambar 3 Hasil Cryogenic Magnet Kawat Superkonduktor Monofilamen BPSCCO Dopan MgO diameter 6 mm dengan sampel (a) 30 jam dan sampel (b) 9 Jam



Gambar 4 Morfologi sampel kawat superkonduktor BPSCCO perbesaran 200 x, 1000 x (Josua,2017)



Gambar 5 Morfologi sampel kawat superkonduktor BPSCCO dopan MgO perbesaran 1000 x, dan 5000 x,  $t=30$  jam,  $d=6$  mm



Gambar 6 Morfologi sampel kawat superkonduktor BPSCCO dopan MgO perbesaran 1000 x, dan 5000 x,  $t=9$  jam  $d=6$  mm

Gambar 4 menunjukkan morfologi permukaan kawat superkonduktor monofilamen BPSCCO dengan diameter 5 mm dengan suhu sintering 8500°C selama 24 jam, dari gambar terlihat adanya *crack* disebabkan adanya proses *rolling* pada kawat. Gambar 5 menunjukkan hasil SEM pada sampel kawat superkonduktor BPSCCO dopan MgO, dari gambar terlihat hampir semua butir mengalami pelelehan secara merata. Pelelehan butiran yang merata menyebabkan butiran menjadi lebih rapat dan terlihat lebih seragam. Hasil SEM pada Gambar 6 dihasilkan dengan perlakuan sintering 9 jam dan diameter 6 mm, gambar tersebut menunjukkan bahwa pada permukaan kawat superkonduktor monofilamen BPSCCO dopan MgO terlihat adanya porositas tinggi dan adanya *crack* disebabkan adanya proses *rolling* pada kawat.

## KESIMPULAN

Penambahan waktu sintering pada sampel superkonduktor mengakibatkan penurunan fraksi volume dari 60 menjadi 40 % dengan demikian fase yang dominan ialah Bi-2212. Parameter kisi yaitu Orthorhombic dengan  $a=5,347 \text{ \AA}$ ,  $b=5,416 \text{ \AA}$  dan  $c=30,67 \text{ \AA}$ . Berdasarkan pengujian SEM pada sampel melalui analisis morfologi terlihat adanya *crack* disebabkan adanya proses *rolling* pada kawat, homogenitas sampel sudah terlihat cukup baik, walaupun butir yang dihasilkan mengalami pelelehan dan terdistribusi secara acak. Melalui analisis resistivitas, penambahan MgO pada selubung tabung Ag, perlakuan sintering dengan waktu 30 jam dan  $d = 6 \text{ mm}$ ,  $T_{\text{C onset}}=72 \text{ K}$  dan  $T_{\text{C zero}}=33 \text{ K}$ , dan pada sampel dengan waktu sintering 9 jam menunjukkan  $T_{\text{C onset}}=78 \text{ K}$  dan  $T_{\text{C zero}}=58 \text{ K}$ .

## UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terimakasih kepada laboratorium Pusat Penelitian Metalurgi dan Material Maju – LIPI, Indonesia.

## DAFTAR PUSTAKA

Abbas M.M., Abbas L.K and Salman U., (2012), Influences of Sintering Time on the  $T_c$  of  $\text{Bi}_{2-x}\text{Cu}_x\text{Pb}_{0,3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  High Temperature Superconductors, Energy Procedia 18, 215-224

- Abbas, M.M., Abbas, L.K., Bahedh, H.S. 2015. Superconducting Properties of  $\text{Bi}_{2-x}\text{Sb}_x\text{Pb}_{0,3}\text{Sr}_{1,9}\text{Ba}_{0,1}\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  Compounds. Journal of Applied Science Research. 11. 22: 164-172
- Darsono, N., Imaduddin, A., Raju, K., Yoon, D.H., (2015), Synthesis and Characterization of  $\text{Bi}_{1,6}\text{Pb}_{0,4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  Superconducting Oxide by High-Energy Milling, J Supercond Nov Magn.
- E. Chew., (2010), Superconducting Transformer Design And Construction, University of Canterbury, Christchurch, New Zealand. March
- Hamadneh, I., Halim, S. A., dan Lee, C. K., (2006), Characterization of  $\text{Bi}_{1,6}\text{Pb}_{0,4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  Ceramic Superconductor Prepared Via Coprecipitation Method at Different Sintering Time, J. Mater. Sci, 41: 5526-5530.
- Hermiz G.Y., Aljurani B.A., Beayaty M.A., (2014), Effect of Mn Substitution on the Superconducting Properties of  $\text{Bi}_{1,7}\text{Pb}_{0,3}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Mn}_x\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$ , International Journal Of Engineering and Advanced Technology (IJEAT). 3. 4: 213-217
- John R Hull, (2003), Applications of high-temperature superconductors in power technology, Reports on Progress in Physics, Volume 66, Number 11
- Lu, X.Y., Yi, D., Chen, H., Nagata, A. 2016. Effect of Sn, MgO and Ag<sub>2</sub>O mix-doping on the formation and superconducting properties of Bi-2223 Ag/tapes. Physics Procedia. 81: 129-132
- Meretliev Sh., Sadykov K.B., Berkeliev A., (2000), Doping of High Temperature Superconductors, Turk J Phy.24: 39-48
- Mohammed, N. H., Ramadhan A., Ali I. A., Ibrahim, I. H., dan Hassan, M. S, (2012), Optimizing the Preparation Conditions of Bi-2223 Superconducting Phase Using PbO and PbO<sub>2</sub>, Materials Sciences and Applications, 3: 224-233.
- Roumie, M., Marhaba, S., Awad R., Kork M., Hassan I., Mawassi R., (2014), Effect of Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Nano-Oxide Addition on the Superconducting Properties of the (Bi,Pb)-2223 Phase, Journal of Supercond Nov Magn, 27: 143-153

Serkan, A., (2008), Production of YBCO Superconductor Sample by Powder-In-Tube Method (PITM); and Effect of Cd and Ga Doping on the System, University, Department of Physics, Malatya-Turkey

Sharma, D., Kumar, R., Awana, V.P.S. 2013. DC and AC Susceptibility Study of Sol-Gel Synthesized  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  Superconductor. Ceramic International. 39:1143-1152