SIFAT LISTRIK SUPERKONDUKTOR YBa₂Cu₃O_{7-x} HASIL PROSES PELELEHAN DENGAN *DOPANT* Ti

Didin S.Winatapura, Yustinus M.P, WisnuA.A, Deswita dan E. Sukirman

Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN) - BATAN Kawasan Puspiptek Serpong, Gedung 41, Tangerang 15314 E-mail: didinsw@batan.go.id

Masuk tanggal: 06-02-2012, revisi tanggal: 12-03-2012, diterima untuk diterbitkan tanggal: 21-03-2012

Intisari

SIFAT LISTRIK SUPERKONDUKTOR $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ HASIL PROSES PELELEHAN DENGAN DOPANT Ti. Telah dilakukan pembuatan superkonduktor $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ (YBCO) yang didoping Ti melalui proses modified melt textured growth (MMTG). Pembuatan cuplikan dilakukan melalui reaksi padatan dengan cara menambahkan serbuk Ti ke dalam prekursor YBCO dengan variasi komposisi 0,4 % berat, 0,7 % berat, 1,0 % berat dan 1,3 % berat. Proses pelelehan YBCO dilakukan pada 1100 °C selama 12 menit, kemudian didinginkan dengan cepat ke 1000 °C dan diikuti dengan pendinginan lambat ke 960 °C. Identifikasi fasa di dalam cuplikan dilakukan dengan menganalisis pola difraksi sinar-X dengan metode Rietveld. Rapat arus, Jc dan suhu kritis, Tc diukur menggunakan four point probe (FPP). Struktur mikro dan komposisi fasa cuplikan diamati dengan scanning electron microscope (SEM) dan energy dispersive x-ray spectroscopy (EDS). Hasil pengamatan menunjukkan bahwa cuplikan merupakan bahan superkonduktor Tc tinggi (STT). YBa₂Cu₃O_{7-y}/Ti - fasa 123 berstruktur kristal ortorombik dari grup ruang Pmmm no. 47. Rapat arus kritis, Jc cuplikan Y-0Ti diperoleh sekitar 67 A.cm⁻² dan kemudian turun terus dengan kenaikan prosentase doping Jc ≈ 4 A.cm⁻². Menyusutnya harga Jc disebabkan Ti tidak dapat mencegah pertumbuhan fasa 211. Bila kandungan Ti bertambah, fasa 211 juga bertambah dengan distribusi tidak homogen dan tumbuh terus serta terbentuk retakan mikro yang sejajar dan memotong butiran YBCO. Akibatnya, fasa YBCO berukuran lebih pendek dan kecil dibandingkan fasa YBCO tanpa doping Ti. Demikian juga, dengan bertambahnya kandungan Ti menyebabkan suhu kritis (Tc) berkurang dari 365 °C menjadi 350 °C.

Kata kunci: Doping, MMTG, Rapat arus kritis, Suhu kritis, Pertumbuhan butir

Abstract

ELECTRICAL CHARACTERICTIC OF YBa2Cu3O7-x SUPERCONDUCTOR DOPED BY Ti USING MELTING PROCESS. Synthesis of YBa2Cu3O7-x (YBCO) superconductor which is doped by Ti using modified melt-textured growth (MMTG) method has been done. The specimen was made by solid state reaction by adding Ti powder to precursor of YBCO result with composition variation (in weight %) of 0.4, 0.7, 1 and 1.3. The melt process of YBCO was done at 1100 $^{\circ}$ C for 12 minutes then cooled rapidly to 1000 $^{\circ}$ C followed by slow cooling to 960°C. Identification of the specimen phase was verified using x-rays diffraction (XRD) and followed by Rietveld method analysis. The critical temperature, Tc and current density, Jc were measured by means of four point probe (FPP). The microstructure and chemical composition of the specimen were observed using scanning electron microscope (SEM) and energy dispersive x-ray spectroscopy (EDS). The result shows that the specimen was YBa₂Cu₃O_{7-x} high Tc superconductor of 123-phase having orthorhombic crystal structure of Pmmm no. 47 space group. The critical current density, Jc of the specimen was obtained about 67A.cm⁻² and then decreased continuously with increasing of Ti dopant till $Jc \approx 4A.cm^{-2}$. Decreasing of Jc caused by Ti can not prevent the growth of 211 phases. In increasing Ti content, 211 phases also increase with unhomogeneous distribution and continue to grow. There is also formation ofmicrocracks parallel to and crossing the YBCO grains. As a result, YBCO have smaller and shorter grain size compared to YBCO grain without Ti doping. Increasing of Ti content also cause decrease from 365 $^{\circ}$ C to 350 $^{\circ}$ C.

Keywords: Doping, MMTG, Critical current density, Critical temperature, Grain growth

PENDAHULUAN

Struktur kristal berlapis pada superkonduktor YBa₂Cu₃O_{7-x} (YBCO) atau biasa disebut superkonduktor Tc tinggi (STT) secara umum berbentuk susunan selang-seling, antara kubus *perovskite* vang mengandung lapisan konduktif CuO (CuO layer) dan lapisan isolator BaO yang berperan sebagai sumber muatan. STT YBCO fasa berstruktur kristal 123 ortorombik dan grup ruang Pmmm no. 47 dengan parameter kisi a = 3.82 Å, b = 3.89Å dan c = 11,68 Å. Dalam semua sistem senyawa STT yang berbasis oksida logam, kehadiran lapisan CuO₂ dalam struktur kristalnya merupakan ciri utama yang hingga kini dipercayai sebagai lapisan paling berperan dalam gejala superkonduktivitas. Jumlah lapisan CuO₂ ini bergantung pada stoikiometri dari senyawa yang bersangkutan^[1-2].

Sampai saat ini bahan STT dalam bentuk prototipe telah diaplikasikan secara luas, antara lain dalam bentuk kabel transmisi energi listrik berdaya tinggi^[3], piranti medan magnet berkekuatan tinggi [4], berbagai piranti yang berbasis pada efek levitasi magnetik^[5], seperti sistem penyimpanan energi magnet (superconducting energy magnetic storage)^[6] dan dalam reaktor Tokamak^[7]. Salah satu sifat yang penting dari STT adalah rapat arus kritis (Jc) yang masih bisa diupayakan untuk ditingkatkan melalui proses pelelehan. Proses pelelehan menghasilkan struktur mikro bahan STT yang highly textured dan dense (rapat), namun fasa Y₂BaCuO₅ (fasa 211) masih tumbuh kontinyu sehingga kenaikan Jc kurang optimum. Agar laju pertumbuhan yang kontinyu dari fasa 211 dihambat maka ditambahkan unsur lain seperti Ni, Pt, Ag₂O, fasa 211^[2,3,8,9] yang berperan sebagai flux pinning centers untuk memperbesar nilai Jc. Pusat jepitan merupakan titik tempat dalam STT yang dapat merintangi pergerakan fluks-fluks magnet (vorteks)[8].

Dalam penelitian ini unsur titanium (Ti) ditambahkan ke dalam precursor YBCO hasil kalsinasi yang diharapkan dapat berperan sebagai flux pinning centers yang optimum untuk meningkatkan nilai J_c. Pada penelitian terdahulu, telah dilakukan upaya peningkatan Jc superkonduktor YBCO melalui proses MMTG dengan cara menambahkan Ag₂O^[10], fasa YBa₂Cu₃O_{7-x} /fasa 211^[11] dan dianiling di dalam lingkungan $O_2^{[12]}$ yang memperlihatkan nilai Jc YBCO meningkat. penelitian ini adalah menumbuhkan fasa-123 yang highly textured dan fasa 211 berbutir halus terdistribusi pada bidang batas butir sedemikian rupa sehingga diperoleh YBCO dengan harga Jc tinggi.

PROSEDUR PERCOBAAN

Dalam penelitian ini disiapkan sampel superkonduktor YBa₂Cu₃O_{7-x} metode reaksi padatan dari unsur penyusun Y₂O₃, BaCO₃, dan CuO kemudian diikuti proses pencampuran dan kalsinasi. Prekursor hasil kalsinasi dicampurkan dengan Ti sebagai dopant dengan variasi kandungan 0 % berat; 0,4 % berat; 0,7 % berat; 1 % berat dan 1,3 % berat untuk setiap 4 gram YBCO, kemudian diikuti dengan proses sinter, dalam bentuk pelet berukuran diameter 1,5 cm tebal 3 mm hingga 4 mm, pada 940 °C selama 10 jam di lingkungan atmosfir. Dari kegiatan ini diperoleh cuplikan sinter, S. Proses dilakukan dengan pelelehan metode MMTG pada 1100 °C selama 12 menit. kemudian diturunkan dengan cepat ke 1000 °C dengan kecepatan 400 °C /jam dan diikuti pendinginan lambat ke 960 °C dengan kecepatan 10 °C /jam. Pada tahap akhir, cuplikan kemudian didinginkan sampai suhu kamar dengan penurunan suhu 60 °C/jam^[10-12]. Dari uraian kegiatan tersebut diperoleh cuplikanYM;Y-0,4Ti; Y-0,7Ti;Y-1 Ti dan Y-1,3 Ti berturut-turut untuk cuplikan dengan doping Ti 0 % berat, 0,4 % berat, 1 % berat dan 1,3 % berat.

Struktur mikro permukaan diamati dengan SEM dan analisis fasa pada cuplikan dilakukan secara kualitatif dan kuantitatif dengan teknik difraksi sinar-x dan metode analisis Rietveld. Pengukuran (rapat) arus kritis (Jc) dan suhu kritis (Tc) cuplikan dilakukan dalam kondisi N2 cair menggunakan metode FPP.

HASIL DAN PEMBAHASAN

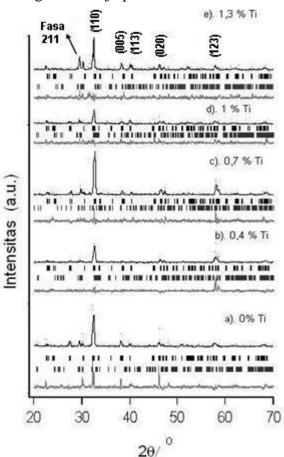
Uji Efek Meissner

Hasil pengujian efek Meissner Ochsenfeld pada suhu nitrogen cair menunjukkan bahwa semua cuplikan memperlihatkan fenomena superkonduktivitas, yakni melayang di atas permukaan magnet permanen SmCo. Pada tersebut cuplikan bersifat diamagnetik sempurna atau dengan kata lain bahwa cuplikan secara dominan merupakan bahan superkonduktor

Difraksi Sinar-X

Hasil analisis metode *Rietveld* pada pola difraksi sinar-x cuplikan superkonduktor YBa₂Cu₃O_{7-x} yang didoping dengan Ti ditunjukkan pada Gambar 1. Tampak bahwa cuplikan telah mengkristal dengan baik yang dicirikan oleh puncak-puncak difraksi yang tajam. Faktor R bernilai relatif cukup besar, dan faktor S bernilai lebih besar dari nilai standar Rietveld (S standar = 1.3)^[13]. Dari hasil analisis juga diketahui densitas, prosentase fraksi massa fasa 123 dan fasa 211. Densitas seluruh cuplikan tidak memperlihatkan perbedaan yang signifikan. Fraksi massa fasa-211 di dalam matrik fasa 123 adalah 16 % berat pada cuplikan tanpa doping Ti. Namun fraksi massa fasa-211 sedikit menyusut menjadi 15 % berat pada cuplikan dengan doping 0,4 % berat. Selanjutnya fraksi massa fasa-211 semakin meningkat dengan bertambahnya doping Ti. Fenomena ini menunjukkan bahwa selama proses

nukleasi dan dekomposisi Ti tidak dapat menghambat laju pertumbuhan fasa-211.



Gambar 1. Profil pola difraksi sinar-X hasil refinement dengan metoda Rietveld dari YBa₂Cu₃O_{7-x} yang didoping Ti dengan variasi komposisi a). 0 % berat, b). 0,4 % berat c). 0,7 % berat d). 1 % berat dan e). 1,3 % berat

Pengukuran Jc danTc

Harga rapat arus kritis J diperoleh dari persamaan:

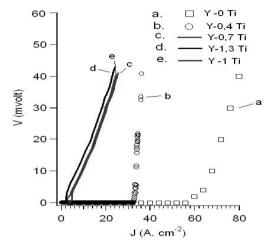
$$J = I/(2,82) \times s \times t \dots (1)$$
 dimana :

I = Arus (ampere)

s = Jarak antar probe = 2 mm

t = Tebal sampel yang diukur = 2 mm

Seperti diperlihatkan pada Gambar 2(a), terlihat bahwa mula-mula tegangan tetap bernilai nol, meskipun nilai rapat arus terus dinaikkan. Dalam kondisi ini bahan masih bersifat superkonduktif. Kemudian arus terus dinaikkan sampai dengan suatu harga rapat arus tertentu, yaitu $J = 56 \text{ A.cm}^{-2}$, tiba-tiba muncul tegangan dan tegangan tersebut terus meningkat dengan bertambahnya nilai (rapat) arus. Pada kondisi J ≈ J_c, hubungan kurva J-V berbentuk linier (ohmik) dan pada kondisi tersebut telah terjadi perubahan sifat bahan menjadi konduktor. Hasil pengukuran selengkapnya dicantumkan pada Tabel 1.

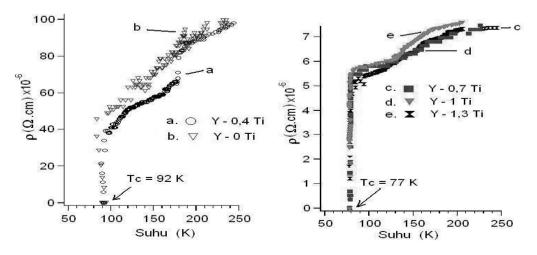


Gambar 2. Kurva V (mvolt) terhadap J (A.cm⁻²) hasil pengukuran dengan metode FPP dari YBa₂Cu₃O_{7-x} yang didoping dengan Ti untuk variasi komposisi % berat (a) 0 (b) 0,4 (c) 0,7 (d) 1 dan (e) 1,3

Berdasarkan pada data hasil pengukuran dengan FPP, rapat arus kritis J_c tanpa diperoleh 67 A.cm⁻², namun dopant dengan penambahan Ti sebesar 0,4 persen, harga J_c turun menjadi 34 A.cm⁻² dan kemudian Jc terus menyusut tajam dengan penambahan unsur Ti hingga 1,3 %, seperti ditunjukkan pada Gambar 2c, 2d dan 2e. J_c

adalah besaran ekstrinsik bagi superkonduktor, sehingga bisa diupayakan untuk ditingkatkan dengan melakukan rekayasa pada strukturmikro bahan, seperti dengan penambahan dopant. Namun dari fenomena ini tampak bahwa rapat arus kritis turun tajam dengan penambahan fasa Ti. Ini menunjukkan bahwa penambahan dalam bulk **YBCO** Τi meningkatkan konektivitas listrik antar butir dan dengan demikian fasa Ti tidak dapat berperan sebagai flux pinning centers vang efektif.

Demikian juga dengan suhu kritis (Tc) YBCO, penambahan unsur Ti hingga 0.4 % berat tidak menyebabkan perubahan yang signifikan, yakni Tc = 365 °C, seperti ditunjukkan pada Gambar 3a dan 3b. Namun demikian tampak seperti pada Gambar 2b, dengan penambahan fasa Ti ke dalam YBCO terdapat perubahan pada resistivitas bahan, yang mana pada saat 180K resistivitas YBCO+0.4Ti menyusut sampai mendekati suhu Tc on line (365 °C). Dengan penambahan fasa Ti hingga 1,3 %, suhu kritis bahan turun tajam hingga mencapai Tc = 350 °C. Penurunan suhu kritis ini juga diikuti dengan menyusutnya resistivitas bahan YBCO, seperti ditunjukkan pada Gambar 3c, 3d dan 3e.



Gambar 3. Kurva ρ (Ω .cm) vs. T(K) hasil pengukuran dengan FPP dari YBa₂Cu₃O_{7-x} yang didoping dengan Ti untuk variasi komposisi (a). 0 % berat, (b). 0,4 % berat (c). 0,7 % berat (d). 1 % berat dan (e). 1,3 % berat

Tabel 1. Hasil pengukuran Jc dan Tc dengan FPP dari YBCO yang didoping unsur Ti

No	Nama	J_{c}	T _c
	Sampel	(A.cm ⁻³)	(K)
1.	Y-0 Ti	67	91
2.	Y-0,4 Ti	34	92
3.	Y-0,7 Ti	6	77
4.	Y-1 Ti	6	77
5.	Y-1,3 Ti	4	77

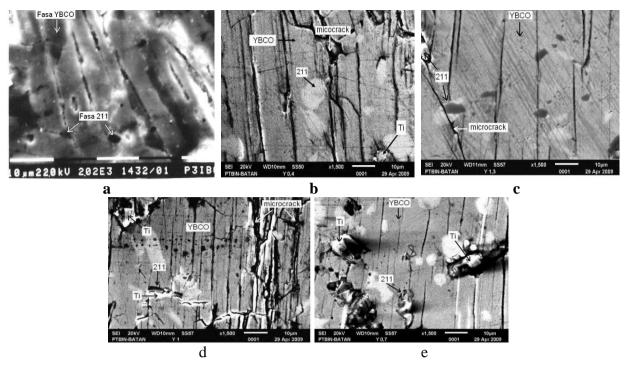
Pengamatan Struktur mikro

Foto permukaan cuplikan YBCO yang diperoleh melalui pengamatan dengan SEM ditunjukkan pada Gambar Permukaan cuplikan YBCO hasil proses pelelehan memperlihatkan butiran yang hampir seluruhnya rapat (dense) dengan densitas bahan, $\rho \approx 6$ g.cm³ dan *highly* textured menuju ke suatu arah tertentu yang tersusun dari butiran berbentuk pelat (plate-shape). Pada cuplikan YBCO tanpa dopant Ti (Y-0Ti) seperti ditunjukkan pada Gambar 4a. terlihat butiran **YBCO** memiliki dimensi ukuran butir yang panjang dengan partikel 211 berukuran kecil terdistribusi secara homogen pada bidang batas butir YBCO.

Namun setelah adanya penambahan unsur Ti, terlihat jelas bahwa butiran YBCO tumbuh lebih pendek dan lebih kecil dari butiran YBCO tanpa dopant Ti, seperti ditunjukkan pada Gambar 4b. Dengan meningkatnya konsentrasi Ti melebihi 0,4 %, butiran YBCO tumbuh menjadi lebih pendek lagi, seperti ditunjukkan pada Gambar 4c-4e. Pada kondisi ini, unsur Ti terdistribusi tidak homogen dalam butiran YBCO. di Demikian juga partikel atau fasa 211 terdistribusi secara tidak homogen pada batas butir YBCO. Pada kondisi ini, juga terbentuk retakan-retakan kecil (microcracks) yang searah dan memotong butiran YBCO hampir pada seluruh cuplikan YBCO yang didoping dengan Ti.

Dari hasil penelitian ini tampak bahwa Ti tidak berperan dalam menghaluskan partikel fasa 211 selama proses nukleasi dan dekomposisi. Ini menunjukkan bahwa Ti tidak dapat meredam pertumbuhan fasa sehingga pada saat konsentrasi kandungan Ti meningkat sampai 1,3 % berat, pertumbuhan fraksi massa fasa atau partikel 211 juga cenderung meningkat. Persentasi fraksi massa fasa 211 meningkat dengan penambahan *dopant* Ti dan diikuti penurunan prosentase fraksi massa fasa YBCO, seperti dicantumkan dalam Tabel 1. Pertumbuhan butiran sepanjang sumbu c juga menyusut bila persen berat campuran Ti meningkat [14]. Dampak dari perubahan butiran oleh adanya penambahan Ti mengakibatkan harga Jc dan Tc juga semakin turun. Harga Jc dan Tc turun drastis untuk doping Ti dengan komposisi 0,7 % berat; 1 % berat dan 1,3 % berat, seperti ditunjukkan pada Gambar 4c-4e.

Perubahan struktur mikro terhadap penurunan rapat arus kritis, Jc dapat dipahami, oleh karena Jc adalah besaran ekstrinsik bagi superkonduktor. Hal ini bisa diupayakan untuk ditingkatkan atau bahkan turun dengan adanya perubahan mikro pada struktur bahan. Dalam penelitian ini penambahan unsur Τi terhadap YBCO dapat memberikan dampak yang merugikan terhadap sifat superkonduktivitas bahan dengan menyebabkan harga J_c turun. Dengan demikian jelas bahwa Ti tidak dapat menghambat laju pertumbuhan partikel sehingga bila konsentrasi meningkat, prosentase fraksi massa fasa 211 juga meningkat. Dalam kondisi ini, juga diikuti pertumbuhan partikel fasa 211 yang tumbuh terus menerus dengan distribusi ukuran partikelnya tidak homogen.



Gambar 4. Foto SEM dari struktur mikro permukaan YBa₂Cu₃O_{7-x} yang didoping dengan Ti untuk variasi komposisi (a) 0 % berat, (b) 0,4 % berat, (c) 0,7 % berat, (d) 1 % berat dan (e) 1,3 % berat

Sebaliknya, suhu kritis T_c merupakan besaran intrinsik, artinya seharusnya Tc tidak mengalami perubahan nilai yang signifikan, walaupun struktur mikro bahan berubah. Namun dalam penelitian ini, diperoleh harga Tc turun menjadi sekitar 350 °C bila konsentrasi Ti melebihi 0.4 % berat, seperti ditunjukkan pada Gambar 4b dan Tabel 2. Turunnya suhu kritis, Tc, pada kondisi ini dapat terjadi oleh karena pada saat proses pendinginan pada suhu sekitar 960 hingga 750 °C, bahan ini melakukan penyerapan oksigen secara Namun dengan besar-besaran. meningkatnya kandungan Ti di dalam bahan, oksigen yang diserap bahan tidak terikat ke struktur kristal YBa₂Cu₃O_{7-x} tetapi diserap oleh Ti dengan membentuk senyawa TiO2. Akibatnya bahan YBCO tersebut memiliki kandungan oksigen yang rendah.

KESIMPULAN

Dari hasil penelitian ini dapat disimpulkan bahwa cuplikan superkonduktor YBa₂Cu₃O_{7-x} (YBCO) fasa 123 yang didoping dengan Ti telah mengkristal dengan baik. Keberadaan Ti dalam YBCO menyebabkan terbentuknya retakan mikro yang merambat searah dan memotong butiran. sehingga YBCO menjadi lebih pendek dan kecil dibandingkan dengan fasa YBCO tanpa doping Ti. Fasa 211 tumbuh secara kontinyu dengan bertambahnya kandungan Ti. Hal ini menunjukkan bahwa Ti tidak dapat menghambat laju pertumbuhan fasa 211 selama proses nukleasi dan dekomposisi. Harga rapat arus kritis Jc bahan turun tajam dengan penambahan fasa Ti di dalam bahan YBCO, ini menunjukkan bahwa dengan penambahan unsur fasa Ti, menyebabkan semakin rendahnya konektivitas antar butir.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] C. Rose-Innes, E. H. Rhoderick. (1st Edition) 1969. *Introduction To Superconductivity*. Oxford-London: Pergamon Press Ltd.
- [2] Darminto. 2001. "Efek Doping Oksigen dan Substitusi Pb Pada Struktur dan Dinamika Vorteks dari Kristal Tunggal Superkonduktor

- δ". Bi2Sr2CaCu2O8+ Desertasi Doktor, ITB.
- [3] Minamim. 1997. *ISTEC Journal*.: 10 (4), 36.
- [4] Robert Schwal. 1997. ..Power System-Other Application". **WTEC** Panel Report on Power Application of superconductivity inJapan Germany.: 57-98, Maryland-US.
- [5] R. D. Blaugher. 1997. "Power System, Generation and Storage". WTEC Panel Report on Power Application of Superconductivity in Japan Germany.: 20-56, Maryland-US.
- [6] Tetsuya Uchimoto, Kenzo Miva. 1999. "Application of High Temperature Superconductors to Enhance Nuclear Fusion Reactors". : 36, 92-103, Japan.
- [7] Ballarino. 2000. Proceeding of EPAC. Vienna, Austria.
- [8] S. Jin, T. H. Tiefel, R. C. Sherwood, M.E.Davis, R.B. Vandover, G.W. Kamm lott, R. A. Fastnachf, Dan H. D. Keith. 1988. Appl. Phys. Lett.: 52, 2074-2076.
- [9] Murakami M, Gotoh S, Fujimoto H, Yamaguchik, Khoshizukan dan Tanaka

- S. 1993. Supercond. Sci. Technol.: 4, S43.
- [10] Didin S. Winatapura, Wisnu Ari Adi. Yustinusmp Dan E, Sukirman. 2007. Jurnal Sains Materi Indonesia.: 8, 114-149.
- [11]E. Sukirman. W. Ariadi. D. S. Winatapura Dan Yustinus. 2006. Ilmiah Teknik Mesin. Universitas Trisakti.: 8, 79-90.
- [12] Didin S. Winatapura Dan Engkir Sukirman. 2009. Jurnal Sains Materi Indonesia.: 10, 136-141.
- [13]F. Izumi. 1989. Rigaku J.: 6,10.
- [14] Rapi-Persad Sawh, Roy Weinstein, Victor Obot, Drew Park, Alberto Gandini Dan Harley Skorpenske. Journal 2006. of**Physics** Conference Series.: 43, 2339-242.

RIWAYAT PENULIS

Didin Sahidin Winatapura, Lulus Sarjana Universitas Padjadjaran - Bandung tahun 1987. Bekerja sebagai peneliti di Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir -BATAN.