



## STUDI AWAL SINTESIS DAN KARAKTERISASI Bi(Pb)-Sr-Ca-Cu-O DENGAN PENAMBAHAN CARBON NANOTUBE DAN TiO<sub>2</sub> MENGUNAKAN METODA REAKSI PADATAN DAN PROSES SINTERING BERULANG

Rizki Syahfina<sup>a</sup>, Bintoro Siswayanti<sup>b,\*</sup>, Sigit Dwi Yudanto<sup>b</sup>, Agung Imaduddin<sup>b</sup>, Nurul Suhada<sup>a</sup>, Fauzan Amri<sup>a</sup>, Mukti Hamjah Harahap<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Jurusan Fisika, Universitas Negeri Medan

Jl. Willem Iskandar Psr. V Medan Estate Sumatera Utara, 20222

<sup>b</sup>Pusat Penelitian Metalurgi dan Material - LIPI

Gedung 470 Kawasan Puspipetek, Serpong, Tangerang Selatan, Indonesia 15310

\*E-mail: [bintorosiswayanti@gmail.com](mailto:bintorosiswayanti@gmail.com)

Masuk Tanggal : 01-08-2017, revisi tanggal : 26-12-2017, diterima untuk diterbitkan tanggal 08-01-2018

### Intisari

Telah dilakukan sintesis Bi<sub>1,6</sub>Pb<sub>0,4</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>10+δ</sub> dengan penambahan CNT (*carbon nanotube*) dan penambahan TiO<sub>2</sub> menggunakan metoda reaksi padatan dengan proses *sintering* berulang. Penambahan CNT sebesar 0,1 % berat dan TiO<sub>2</sub> sebesar 5 % berat dan *sintering* berulang dilakukan untuk mempelajari pengaruhnya terhadap pembentukan fasa 2223 beserta pengotornya, dan mempelajari perubahan morfologi Bi<sub>1,6</sub>Pb<sub>0,4</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>10+δ</sub>. Berdasarkan hasil XRD, penambahan 0,1 % berat CNT dan TiO<sub>2</sub> sebesar 5 % berat pada superkonduktor Bi(Pb)-2223 diketahui menghasilkan fasa 2223, fasa 2212, dan juga fasa pengotor. Namun proses *sintering* berulang mampu mengurangi fasa impuritas, meningkatkan fraksi volume 2223, serta menurunkan fraksi volume 2212. Berdasarkan pengamatan struktur morfologi melalui SEM, penambahan CNT pada superkonduktor Bi(Pb)-2223 membentuk serpihan memanjang dengan ruang porositas yang besar sedangkan penambahan TiO<sub>2</sub> membentuk gumpalan pada struktur morfologi Bi(Pb)-2223. Proses *sintering* berulang mampu memperbaiki struktur morfologi B-CNT dan B-TiO menjadi semakin rapat dan ruang porositas yang semakin kecil.

**Kata Kunci:** Bi(Pb)-2223, carbon nanotubes, TiO<sub>2</sub>, metoda padatan, *sintering* berulang

### Abstract

Bi<sub>1,6</sub>Pb<sub>0,4</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>10+δ</sub> with the addition of carbon nanotubes (CNT) and TiO<sub>2</sub> have been synthesized using solid state reaction method with the repeated sintering process. 0.1 wt % of CNT and 5 wt% of TiO<sub>2</sub> have been added to analyze the effect on the synthesizing of 2223 phases. The superconductors were analyzed using XRD (x-ray diffractometer) and SEM (scanning electron microscopy). Based on the XRD, the addition of CNTs and TiO<sub>2</sub> at this composition results, 2223, 2212, and impurities. However, the repeated sintering process in the B-CNT and B-TiO eliminates the impurities phase thus increasing the volume fraction 2223 and decreasing the volume fraction 2212. Based on morphological structure through SEM observation, the addition of CNT in the Bi(Pb)-2223 formed longer plates with large porosity spaces while the addition of TiO<sub>2</sub> formed clumps on the Bi(Pb)-2223 morphological structure. However, the repeated sintering process improves the morphological structure of B-CNT and B-TiO to become denser and decreases porosity space.

**Keywords:** Bi(Pb)-2223, carbon nanotubes, TiO<sub>2</sub>, solid state method, repeated sintering

## 1. PENDAHULUAN

Teknologi superkonduktor mulai berkembang pesat sejak ditemukannya HTS (*high*

*temperature superconductor*) pada tahun 1986. Bahan HTS telah dikembangkan dalam aplikasi teknologi yang bervariasi luas, mulai dari aplikasi piranti elektronik, transmisi daya

berkapasitas besar, peralatan yang menggunakan medan magnet berkekuatan tinggi, sampai dengan berbagai peralatan teknik yang mengandalkan efek levitasi magnetik seperti misalnya SMES (*superconducting magnetic energy storage system*) [1]. BSCCO (*bismuth- stronsium- calcium- cooper oxide*) merupakan salah satu bahan HTS yang ditemukan pada tahun 1988 oleh H. Maeda [2]. Dari penemuan tersebut, teridentifikasi bahwa BSCCO memiliki tiga fasa, yaitu fasa 2201, fasa 2212, dan fasa 2223. Fasa 2223 merupakan fasa yang paling potensial untuk aplikasi dibandingkan dengan fasa-fasa lainnya karena suhu kritisnya tinggi [3].

Sejak ketiga fasa tersebut ditemukan, berbagai penelitian telah dilakukan untuk mengetahui efek penambahan maupun substitusi berbagai elemen pada sistem BSCCO terhadap fase, kerapatan butir, dan morfologi [4]. Penambahan dopan Pb pada BSCCO mengakibatkan substitusi atom Bi oleh atom Pb pada lapisan ganda Bi-O. Ini karena kemiripan ukuran ion dan nilai valensi dari atom Pb dengan atom Bi. Sehingga substitusi Pb membantu menstabilkan BSCCO-2223 dan juga meningkatkan fraksi volume pada fasa 2223 [1]. Selain faktor pembentukan fasa BSCCO-2223, kerapatan butir dan tekstur yang tinggi juga merupakan faktor penting untuk menghasilkan superkonduktor BSCCO dengan suhu kritis dan rapat arus yang tinggi [4]. Beberapa tahun terakhir ini, penelitian BSCCO menggunakan penambahan CNT (*carbon nanotube*) karena mampu memperkecil morfologi butir fasa BSCCO yang morfologi tersebut berdampak pada peningkatan nilai rapat arus kritis ( $J_c$ ) [5]. Hanya saja, Saoudeh, dkk.[3] mendapati penambahan 0,1 %berat CNT pada superkonduktor  $\text{Bi}_{1,6}\text{Pb}_{0,4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  yang dilakukan *sintering* pada 850 °C selama 20 jam berdampak pada penurunan intensitas fasa 2223 sekaligus penambahan puncak 2212. Penambahan CNT tersebut juga berdampak pada penurunan homogenitas morfologi butir.

Penambahan  $\text{TiO}_2$  pada fasa Bi-2223 dan Bi-2212 juga dapat menurunkan ukuran butir [4]. Sementara Grivel, dkk. [6] mendapati penambahan  $\text{TiO}_2$  berpengaruh pada perubahan fraksi volume fasa 2223, yakni 95,5%; 97,2%; 93,9%; dan 83,2% untuk urutan penambahan  $\text{TiO}_2$  0, 1, 2, 4 %berat. Grivel juga mendapati penambahan 4 %berat  $\text{TiO}_2$  menghasilkan sejumlah pengotor terutama  $\text{SrTiO}_3$ . Hamid [4]

juga mendapati penambahan  $\text{TiO}_2$  mampu mengontrol ukuran butir fasa yang terbentuk.

Beberapa penelitian juga telah membuktikan bahwa komposisi awal, penggerusan berulang, waktu *sintering*, dan suhu *sintering* memiliki pengaruh yang kuat pada pembentukan fasa 2223 [7]. Abbas [8] telah melakukan tiga tahapan *sintering* serta penggerusan berulang pada bahan superkonduktor  $\text{Bi}_{2-x}\text{Li}_x\text{Pb}_{0,4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  dengan *sintering* I dan II pada suhu 850 °C selama 50 jam, kemudian *sintering* III pada suhu 830 °C untuk 40 jam, hasil analisis menunjukkan bahwa pemanasan berulang dapat meningkatkan suhu kritis sampai 130 K.

Dalam penelitian ini dilakukan proses *sintering* berulang serta penggerusan berulang pada superkonduktor BPSCCO yang ditambahkan 0,1 %berat CNT dan ditambahkan 5 %berat  $\text{TiO}_2$ . Penambahan dan *sintering* berulang dimaksudkan untuk mempelajari pengaruhnya terhadap pembentukan fasa 2223 beserta pengotornya dan pengaruhnya terhadap perbaikan morfologi  $\text{Bi}_{1,6}\text{Pb}_{0,4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$ .

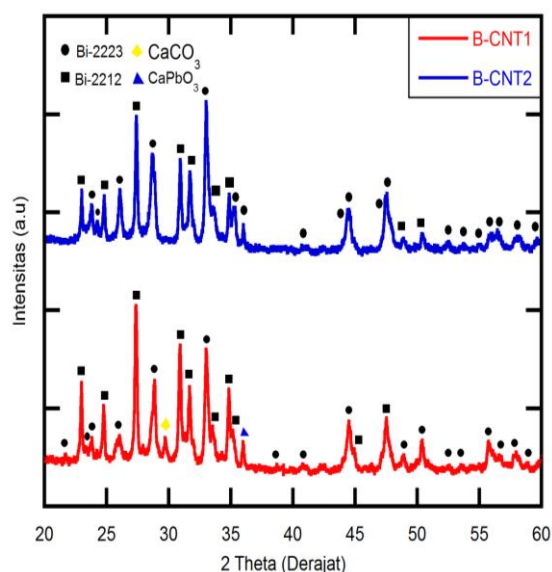
## 2. PROSEDUR PERCOBAAN

Bahan-bahan dasar berupa serbuk  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  (98%, Kanto),  $\text{SrCO}_3$  (96%, Kanto),  $\text{CaCO}_3$  (98,5%, Merck),  $\text{CuO}$  (99%, Merck), dan  $\text{PbO}_2$  (97%, Kanto) ditimbang sesuai perbandingan molar Bi : Pb : Sr : Ca : Cu = 1,6 : 0,4 : 2,0 : 2,0 : 3,0. Pembuatan BPSCCO dilakukan menggunakan metoda padatan dengan mencampurkan semua bahan dengan cara digerus menggunakan mortar agate selama 3 jam. Setelah itu bahan dihidrolisis pada suhu 300 °C selama 8 jam. Kemudian digerus kembali selama 6 jam. Dilanjutkan dengan kalsinasi pada suhu 820 °C selama 20 jam. Masing-masing sampel ditambahkan 0,1 %berat serbuk CNT (jenis *multi walled* dengan kemurnian > 99%) dan 5 %berat serbuk  $\text{TiO}_2$  (98,5%). Masing - masing digerus selama 20 menit dan dicetak dengan diameter 12 mm dan ketebalan 3 mm, tekanan sekitar 379 MPa. Sehingga didapatkan dua jenis sampel B-CNT dan B-TiO. Angka selanjutnya pada label tersebut menunjukkan pengulangan *sintering*. Pelet superkonduktor dilakukan *sintering* pada suhu 850 °C selama 30 jam dengan kenaikan suhu 5 °C/menit. Kemudian pelet digerus ulang lalu dicetak dan dilakukan *sintering* kembali. Sampel yang telah diproses kemudian dianalisis dengan XRD type *PAN analytical empyrean* dan SEM merk JEOL-6390A.

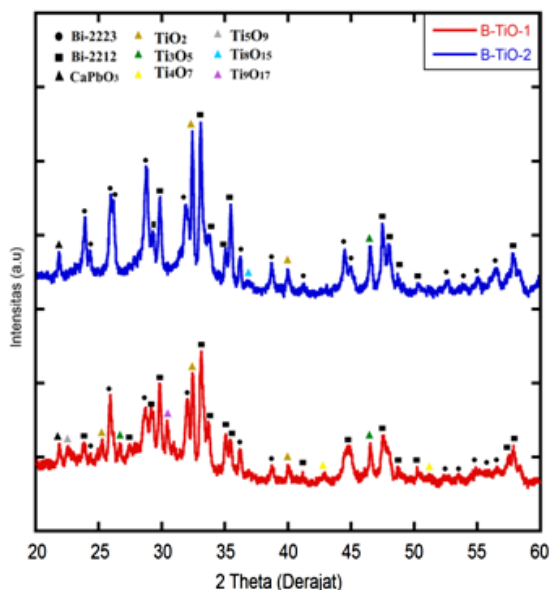
### 3. HASIL DAN DISKUSI

#### 3.1 Analisis Fasa Menggunakan XRD

Hasil analisis XRD pada superkonduktor B-CNT dan B-TiO dengan perlakuan *sintering* berulang dapat dilihat pada Gambar 1 dan 2.



Gambar 1. Pola difraksi BPSCCO-2223 +CNT *sintering* 1 kali (B-CNT1) dan *sintering* 2 kali (B-CNT2)



Gambar 2. Pola difraksi BPSCCO+TiO<sub>2</sub> *sintering* 1 kali (Ti-1) dan *sintering* 2 kali (Ti-2)

Pada Gambar 1 dan Gambar 2 menunjukkan bahwa pengulangan *sintering* baik pada B-CNT maupun B-TiO, keduanya menghasilkan fasa 2223 dan 2212, serta *sintering* berulang mampu mengurangi fasa-fasa pengotor. Gambar 1 B-CNT1 menunjukkan fasa yang terbentuk adalah fasa 2223 dan fasa 2212. Sementara fasa impuritiesnya adalah CaCO<sub>3</sub> dan CaPbO<sub>3</sub>. Fasa

impuritas ini terbentuk akibat adanya dekomposisi pada bahan dasar pembentuk BPSCCO yang belum bereaksi sempurna [9]. Sedangkan pada superkonduktor B-CNT2, menunjukkan *sintering* berulang mampu menyempurnakan reaksi sehingga fasa impuritas tersebut bertransformasi menjadi fasa BPSCCO.

Gambar 2 menunjukkan sampel B-TiO-1 membentuk berbagai fasa impuritas, yakni CaPbO<sub>3</sub>, Ti<sub>3</sub>O<sub>5</sub>, Ti<sub>4</sub>O<sub>7</sub>, Ti<sub>5</sub>O<sub>9</sub>, Ti<sub>8</sub>O<sub>15</sub> dan Ti<sub>9</sub>O<sub>17</sub>. Sementara pada sampel B-TiO-2 sejumlah impuritas menghilang hingga tersisa CaPbO<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub>, Ti<sub>3</sub>O<sub>5</sub>, dan Ti<sub>8</sub>O<sub>15</sub>. Gambar 1 dan 2 mengkonfirmasi bahwa *sintering* berulang pada B-CNT maupun B-TiO memberikan pengaruh hasil yang baik, yakni peningkatan kemurnian fasa superkonduktor Bi(Pb)-2223 yang dapat dilihat melalui nilai fraksi volume perbandingan fasa 2223 dan fasa 2212 pada Tabel 1.

Tabel 1. Perbandingan fraksi volume BPSCCO +CNT dan BPSCCO+TiO<sub>2</sub> fasa 2223 dan fasa 2212

No	Material	Proses <i>Sintering</i> (850 °C, 30 jam)	Fraksi Volume (%)	
			Bi-2223	Bi-2212
1	BPSCCO+ CNT	1 kali	40	60
2	BPSCCO+ CNT	2 kali	65	35
3	BPSCCO+ TiO <sub>2</sub>	1 kali	33	67
4	BPSCCO+ TiO <sub>2</sub>	2 kali	62	38

Gambar 1 menunjukkan fasa pengotor berasal dari bahan baku BPSCCO. Fasa puncak CNT yang merupakan bahan tambahan pada material tidak terdeteksi karena CNT yang bersifat amorf [10]. Gambar 2 menunjukkan bahwa tambahan TiO<sub>2</sub> turut terlibat dalam mekanisme reaksi dan menghasilkan berbagai jenis oksida Ti. Didin dkk. [11] menjelaskan bahwa keberadaan impuritas Ti mengakibatkan pertumbuhan fasa 2223 terhambat. Berdasarkan analisis fasa yang dilakukan menggunakan *MATCH*, struktur kristal pada material BPSCCO dengan penambahan 0,1 % berat CNT dan 5 % berat TiO<sub>2</sub> ialah orthorombik.

Fraksi volume superkonduktor BPSCCO dengan penambahan CNT dan TiO<sub>2</sub> antara fasa 2223 dan fasa 2212 dapat diketahui melalui persamaan 1 dan 2 di bawah ini.

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

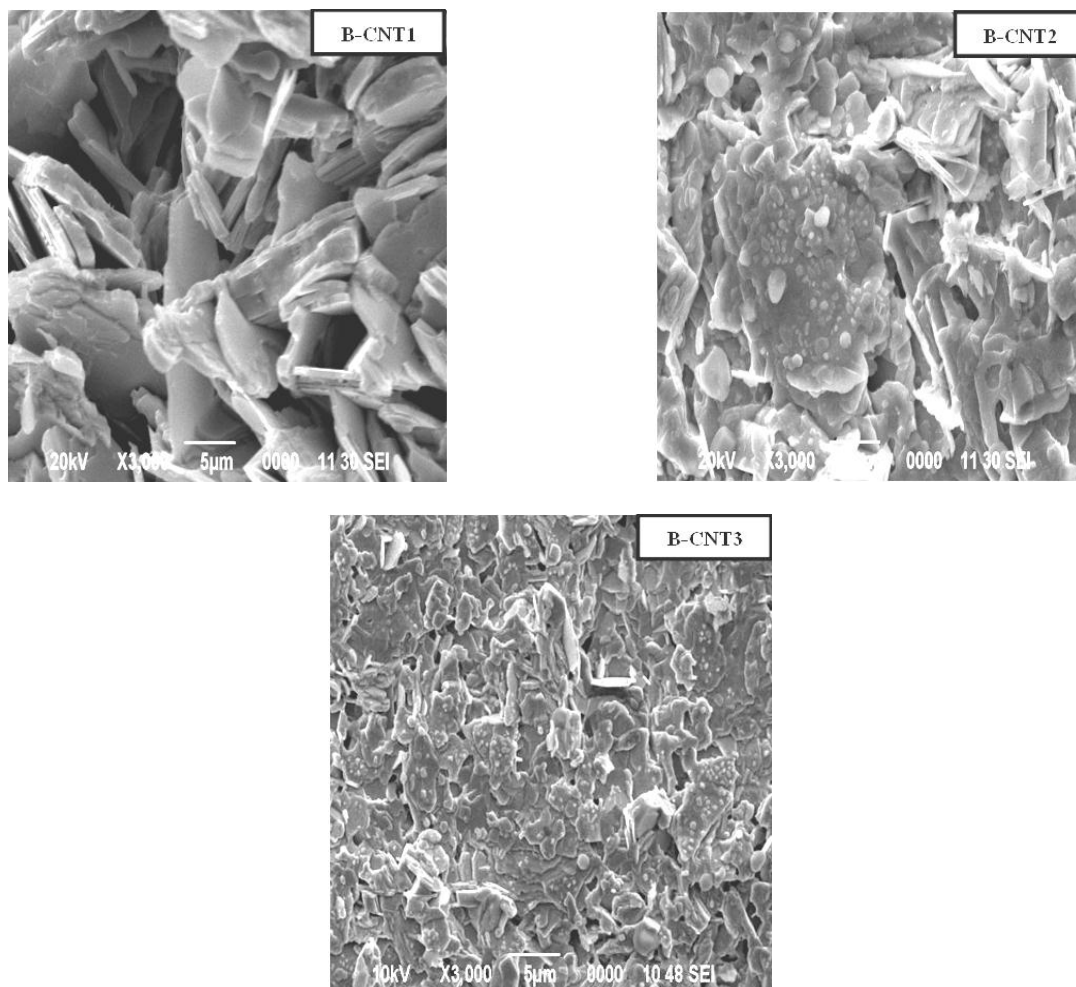
$$Bi - 2212 (\%) = \frac{\sum I_{2212}}{\sum I_{2223} + \sum I_{2212}} \times 100\%$$

### 3.2 Analisis Morfologi Menggunakan SEM

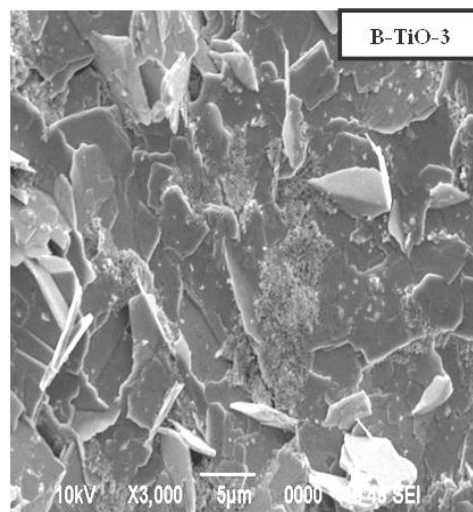
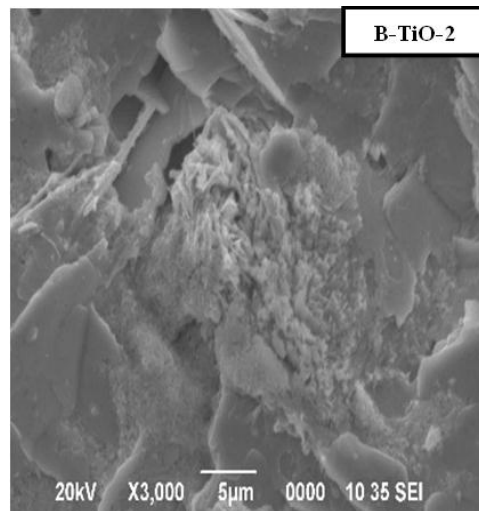
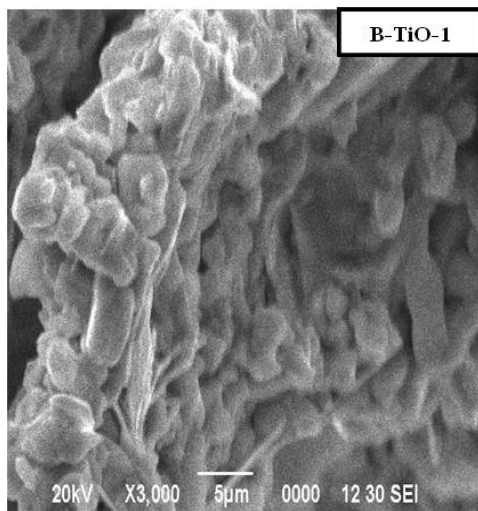
Hasil morfologi permukaan material superkonduktor B-CNT dan B-TiO dengan perlakuan *sintering* berulang dapat dilihat pada Gambar 3 dan Gambar 4. Gambar 3 memperlihatkan morfologi permukaan material superkonduktor BPSCCO untuk B-CNT1 yang terdistribusi secara acak berbentuk serpihan memanjang yang belum menyatu dan memiliki ruang porositas yang besar [3]. Pada B-CNT2 struktur berubah seperti bentuk lelehan [12] yang mulai memadat dan porositas yang terbentuk juga semakin kecil. Pada B-CNT3 menunjukkan perubahan morfologi yang semakin bagus ditandai dengan struktur permukaan semakin memadat dan porositas yang semakin kecil. Struktur morfologi berubah diperkirakan karena proses penggerusan

berulang dan proses *sintering* berulang. Pada saat proses *sintering* berlangsung terjadi difusi kristal melewati batas butir (*grain boundaries*) dan perluasan area singgungan antar kristal sehingga akan memperbesar ukuran butir dan terjadi proses rekristalisasi dan pertumbuhan butir. Proses difusi atom-atom terjadi dan menghasilkan penyusutan material yang diiringi dengan pengurangan porositas [13].

Gambar 4 memperlihatkan morfologi B-TiO-1 berupa butiran kecil berlapis dan membentuk gumpalan-gumpalan. Penurunan rata-rata ukuran butir juga akibat adanya penambahan serbuk  $TiO_2$  [4]. Porositas pada B-TiO-1 terlihat sedikit dengan ruang kosong yang cukup besar sedangkan pada B-TiO-2 dan B-TiO-3 butiran terdistribusi lebih stabil dengan porositas dan gumpalan yang semakin sedikit akibat proses *sintering* berulang. Namun struktur morfologi Bi(Pb)-2223 dengan penambahan  $TiO_2$  terlihat lebih rapat dibandingkan dengan penambahan CNT.



Gambar 3. Hasil uji SEM untuk BPSCCO+CNT *sintering* 1 kali (B-CNT1), BPSCCO+CNT *sintering* 2 kali (B-CNT2), BPSCCO+CNT *sintering* 3 kali (B-CNT3)



Gambar 4. Hasil uji SEM untuk BPSCCO+TiO *sintering* 1 kali (B-TiO-1), BPSCCO+TiO *sintering* 2 kali (B-TiO-2), BPSCCO+TiO *sintering* 3 kali (B-TiO-3)

#### 4. KESIMPULAN

Dari hasil pembuatan bahan superkonduktor  $\text{Bi}_{1,6}\text{Pb}_{0,4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  dengan penambahan CNT sebesar 0,1 % berat dan  $\text{TiO}_2$  sebesar 5 % berat menggunakan metoda padatan dan proses *sintering* berulang maka dapat disimpulkan bahwa dari hasil analisis XRD menunjukkan BPSCCO yang mendapat penambahan  $\text{TiO}_2$  menghasilkan berbagai impuritas yang lebih banyak jenisnya daripada yang mendapat penambahan CNT. Namun proses *sintering* berulang pada B-CNT dan B-TiO menghilangkan fasa impuritas sehingga meningkatkan fraksi volume 2223 serta menurunkan fraksi volume 2212. Berdasarkan pengamatan struktur morfologi melalui SEM, penambahan CNT pada Bi(Pb)-2223 membentuk serpihan memanjang dengan ruang porositas yang besar sedangkan penambahan  $\text{TiO}_2$  membentuk gumpalan. Namun proses

*sintering* berulang memperbaiki struktur morfologi B-CNT dan B-TiO menjadi semakin rapat dan ruang porositas yang semakin kecil.

#### UCAPAN TERIMAKASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Lembaga Ilmu Pengetahuan Indonesia (LIPI) yang telah mendanai penelitian ini melalui Program Unggulan LIPI tahun 2017.

#### DAFTAR PUSTAKA

- [1] N. Amani, "Xrd Analysis of Bi-2212 superconductors: Prepared by the self-flux method," *J. Natural*, vol. 13, no. 1, pp. 23-27, 2013.
- [2] H. Maeda, Y. Tanaka, M. Fukutomi dan T. Asano, "A new high-Tc oxide superconductor without a rare earth element," *Japanesse J. App. Phys*, vol. 27, no.2, pp. L209-L210, 1988.



- [3] A. Saoudeh, A. Amira, Y. Boudjadja, N. Mahamdioua, L. Amirouche, A. Varilci, S. P. Altintas, dan C. Terzioglu, "Study of the thermo-magnetic fluctuations in carbon nano-tubes added Bi-2223 superconductors," *Phys. B Condens. Matter*, vol. 429, pp. 33-37, 2013.
- [4] N. A. Hamid dan R. Abd-Shukor, "Effects of TiO<sub>2</sub> addition on the superconducting properties of Bi-Sr-Ca-Cu-O system," *J. Material Sci*, vol. 35, pp. 2325-2329, 2000.
- [5] D. H. Galvan, A. Duran, F. F. Castillon, E. Adem, R. Escudero, D. Ferrer, A. Torres, dan M. José - Yacamán, "Enhancement of the current density J<sub>c</sub> for Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8</sub> by means of carbon and NbSe<sub>2</sub> nanotubes," *J. Supercond. Nov. Magn.*, vol. 21, no. 5, pp. 271-277, 2008.
- [6] J. C. Grivel, A. Jeremie, dan R. Fliikiger, "The influence of TiO<sub>2</sub> additions on the formation and the superconducting properties of the (Bi, Pb) 2Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>10-y</sub> phase," *Supercond. Sci. Technol*, vol. 8, pp 41-48, 1995.
- [7] A. Maqsood, "Synthesis and thermophysical characterization of Bismuth based high-T<sub>c</sub> superconductors," *Book Intechopen*, pp. 249-262, 2010.
- [8] M. M. Abbas, S. F. Oboudi, dan N. Q. Raoof, "Investigating the preparation conditions on superconducting properties of Bi<sub>2-x</sub>LixPb<sub>0.3</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>10+δ</sub>," *Mater. Sci. Appl.*, vol. 6, no. 4, pp. 310-321, 2015.
- [9] N. Darsono, A. Imaduddin, K. Raju, dan D. H. Yoon, "Synthesis and characterization of Bi<sub>1.6</sub>Pb<sub>0.4</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> superconducting oxide by high-energy milling," *J. Supercond. Nov. Magn.*, vol. 28, no. 8, pp. 2259-2266, 2015.
- [10] L. Amirani, "Sintesis superkonduktor MgB<sub>2</sub> dengan penambahan carbon nanotube menggunakan metoda powder in tube," Skripsi, Universitas Sumatera Utara, 2016.
- [11] D. S. Winatapura, M. P. Yustus, A. A. Wisnu, Deswita, dan E. Sukirman, "Sifat listrik superkonduktor YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> hasil proses pelelehan dengan dopant Ti," *Majalah Metalurgi*, vol. 27, no. 1, pp. 35-42, 2012.
- [12] N. H. Mohammed, "Optimizing the preparation conditions of Bi-2223 superconducting phase using PbO and PbO<sub>2</sub>," *Mater. Sci. Appl.*, vol. 3, no. 4, pp. 224-233, 2012.
- [13] Lusiana, "Proses Pembuatan Material Superkonduktor BSCCO dengan Metoda Padatan," *Majalah Metalurgi*, vol. 29, no. 1, pp. 73-82, 2014.