

EFEK PERLAKUAN PANAS PADA KAWAT SUPERKONDUKTOR *INTERNAL-TIN ROD RESTACK* *PROCESS* Cu-Nb-Sn

Bintoro Siswayanti¹, Bambang Soegijono², Andika W. Pramono¹
dan Pius Sebleku¹

¹Pusat Penelitian Metalurgi (P2M) - LIPI
Kawasan Puspiptek, Serpong 15314, Tangerang Selatan

²Material Science, Pasca Sarjana - UI
Jl. Salemba Raya, Jakarta Pusat
e-mail: bint002@lipi.go.id

Diterima: 7 Januari 2013

Diperbaiki: 8 Mei 2013

Disetujui: 13 Juni 2013

ABSTRAK

EFEK PERLAKUAN PANAS PADA KAWAT SUPERKONDUKTOR *INTERNAL-TIN ROD RESTACK PROCESS* Cu-Nb-Sn. Pemanasan dalam kondisi terproteksi dari oksidasi pada suhu 450 °C selama 72 jam telah dilakukan pada kawat superkonduktor Cu-Nb-Sn produksi *Luvata Waterbury Inc.* yang dibuat dengan *Internal-Tin Rod Restack Process (IT-RRP)*. Proses pendinginan dilakukan secara lambat di dalam tungku. Struktur mikro dan komposisi fasa cuplikan diamati dengan *Scanning Electron Microscope (SEM)* dan *Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy (EDS)*. Identifikasi evolusi fasa mengacu kepada diagram kesetimbangan fasa. Hasil pengamatan menunjukkan bahwa pada pemanasan dengan suhu 450 °C selama 72 jam telah terbentuk intermetalik Nb₃Sn, larutan padat α-Nb dan juga Nb₃Sn yang superkonduktivitasnya menurun. Selain itu didapati interkoneksi filamen yang tidak diharapkan. Hal ini menyebabkan evolusi fasa Nb menjadi A15 Nb₃Sn yang homogen belum optimal, sehingga diperlukan jarak antar filamen Nb yang lebih lebar pada kawat *IT-RRP* untuk menghindari interkoneksi filamen A15 Nb₃Sn.

Kata kunci: Superkonduktor, *IT-RRP*, Intermetalik Nb₃Sn, Larutan padat α-Nb, A15 Nb₃Sn

ABSTRACT

EFFECT OF HEATING TREATMENT ON INTERNAL-TIN ROD RESTACK PROCESS Cu-Nb-Sn SUPERCONDUCTING WIRE. A heating treatment in oxydation protected condition at temperature of 450 °C for 72 hours on Cu-Nb-Sn superconducting wire produced by *Luvata Waterbury Inc.* with *Internal-Tin Rod Restack Process (IT-RRP)* has been done. Cooling process was slowly done in the furnace. Microstructure and phase composition of the samples were observed by *Scanning Electron Microscope (SEM)* and *Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy (EDS)*. Identification of phase evolution refers to the equilibrium phase diagram. The results showed that intermetallic Nb₃Sn, α-Nb solid solution and Nb₃Sn with less superconductive characteristic were formed. Moreover, unexpected interconnecting filaments was also found. The phenomena caused phase evolution of Nb into homogeneous Nb₃Sn A15 has not yet optimal, therefore wider distances between Nb filament wire at the *IT-RRP* to avoid interconnection of A15 Nb₃Sn filaments is required.

Keywords: Superconductor, *IT-RRP*, Nb₃Sn intermetallic, α-Nb solid solution, A15 Nb₃Sn

PENDAHULUAN

Material superkonduktor terutama digunakan pada aplikasi teknologi medan magnet tinggi [1] seperti dalam aplikasi peralatan pencitraan resonansi magnet, *Magnetic Resonance Imaging (MRI)*. Nb₃Sn dengan struktur kristal A15 merupakan intermetalik yang memiliki sifat superkonduktor [2]. Fase A15 Nb₃Sn bersifat rapuh,

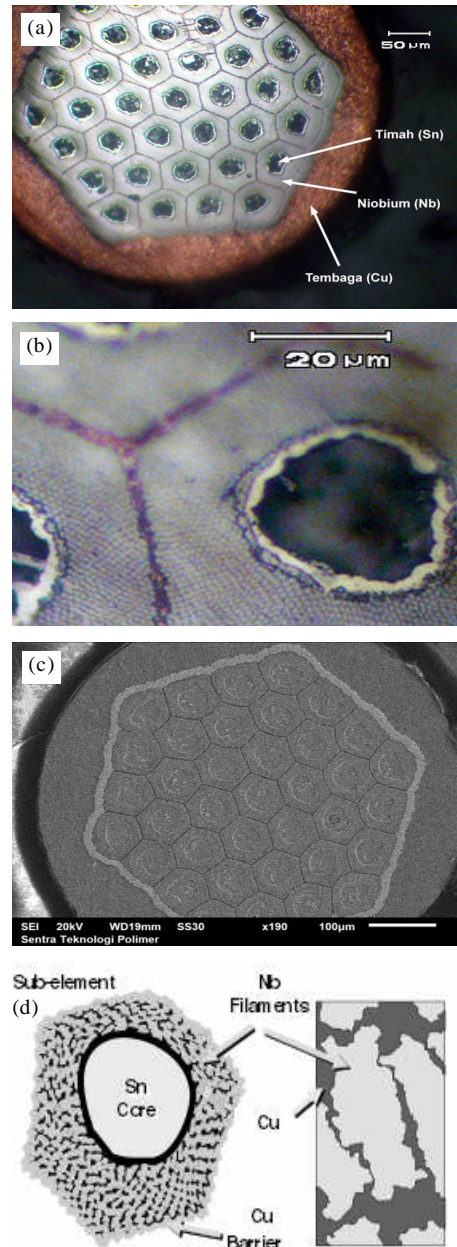
sehingga sulit dilakukan proses pembentukan kawat terhadapnya. Fasa tersebut akan terputus sepanjang pembentukan kawat. Untuk mengatasi hal tersebut, maka Cu-Nb-Sn dibentuk menjadi komposit kawat terlebih dahulu sebelum dipanaskan untuk mendapatkan A15 Nb₃Sn [3].

A15 Nb₃Sn yang rapuh tersebut perlu diperkuat oleh matriks konduktor. Matriks konduktor juga berperan sebagai penahan kestabilan termal dan elektris [4]. Pada kawat *Internal-Tin Rod Restack (IT-RRP)* buatan *Luvata Waterbury* ini Nb dan Sn dikompositkan dengan Cu. Agar stabilitas termal dan elektris meningkat, maka A15 Nb₃Sn perlu dibuat dalam bentuk monofilamen halus yang terdistribusi dalam matriks konduktor tersebut [5]. Hanya saja jarak penanaman antar monofilamen Nb harus diperhatikan agar tidak terjadi interkoneksi antar monofilamen setelah pemanasan [6]. Selain itu Cu berperan sebagai katalis untuk menurunkan suhu pembentukan A15. Proses reaksi pada suhu rendah tersebut dapat menghambat pertumbuhan butir A15. Pada sistem terner Cu-Nb-Sn yang mengandung 2 % hingga 3 % Cu dapat menurunkan suhu pembentukan A15 dari 930 °C hingga 450 °C [5].

Hal penting yang terkait sifat superkonduktivitas adalah nilai suhu kritis (T_c), medan magnet kritis atas (H_{c2}) dan kepadatan arus kritis (J_c). Ketiga hal tersebut ditentukan oleh kehomogenan kimiawi dan struktur mikro lapisan intermetalik A15 Nb₃Sn [7]. Kualitas dan kehomogenan mikrokimia yang dimaksud adalah kadar Sn yang mendekati stoikiometri dan juga seminimal mungkin gradien komposisi Sn sepanjang lapisan intermetalik A15 Nb₃Sn [7]. Semakin tinggi rata-rata kadar Sn dalam lapisan A15 Nb₃Sn, maka akan diperoleh suhu kritis (T_c), medan magnet kritis atas (H_{c2}) dan kepadatan arus kritis (J_c) yang semakin tinggi [5].

Pengurangan ukuran butir juga penting untuk mendapatkan kepadatan arus tinggi [3]. Semakin kecil ukuran butir akan meningkatkan *pinning force* yang berperan untuk mengunci pergerakan *flux line* atau *fluxon* pada bagian dalam material helaian kawat Nb₃Sn [8]. Batas butir merupakan *pinning center* yang utama [4].

Dalam penelitian ini dilakukan pemanasan pada suhu 450 °C selama 72 jam untuk kawat superkonduktor Cu-Nb-Sn *IT-RRP* produksi *Luvata Waterbury Inc.* yang berisi 37 buah sub-elemen kawat berbentuk segi enam berisi Cu-Nb-Sn. Perlakuan panas ini bertujuan untuk meneliti perubahan struktur mikro, evolusi fasa dan distribusi unsur pada kawat superkonduktor tersebut akibat proses pemanasan. Sebagai prediksi awal, Cu kemungkinan tidak larut dalam A15 Nb₃Sn walaupun sub-elemen kawat mengandung Cu-Nb-Sn [5]. Meski demikian dari penelitian sebelumnya telah dilaporkan bahwa Cu dapat dideteksi pada lapisan A15, hingga secara umum asumsi yang digunakan adalah Cu hanya berada di batas butir tidak muncul dalam butir A15 [9]. Sehingga pembahasan selanjutnya akan mengacu pada sistem biner Nb-Sn [5,9]. Penggunaan kawat superkonduktor *IT-RRP* diharapkan mampu meminimalisasi gradien konsentrasi karena dengan metode pembuatan kawat tersebut memungkinkan tersedianya luas permukaan kontak *diffusion couple* pada reaksi *solid state diffusion* Nb-Sn [9-11].



Gambar 1. (a). Penampang kawat dalam skala 50 μm terdiri dari 37 buah sub-elemen kawat, (b). Penampang sub-elemen kawat dalam skala 20 μm, (c). Foto SEM penampang kawat dalam skala 100 μm dan (d). Skema sub-elemen *IT-RRP* kawat *Luvata Waterbury Inc.* yang mengandung filamen Nb.

METODE PERCOBAAN

Dalam penelitian ini digunakan kawat superkonduktor *IT-RRP* Cu-Nb-Sn produksi *Luvata Waterbury Inc.* yang tampang lintangnya ditunjukkan pada Gambar 1. Adapun detail parameter kawat superkonduktor ini ditunjukkan pada Tabel 1. Sampel kawat ini dipotong sepanjang 5 cm, dijepit ujung-ujungnya kemudian dimasukkan ke dalam tabung *quartz*. Selanjutnya, tabung divakum dan dialiri gas Argon untuk mencegah oksidasi dan tabung ditutup

Tabel 1. Parameter kawat superkonduktor IT-RRP.

Parameter	Kawat Internal Tin
Diameter Kawat (μm)	570
Jumlah Sub-elemen	37
Ukuran Sub-elemen (μm)	77 - 78
Ukuran Filamen Nb (RRP) dalam matriks Cu (μm)	$\pm 1,5$
Cu Stabilizer dalam Sub-elemen (%at.)	42,42
Nb dalam Sub-elemen (%at.)	43,23
Sn dalam Sub-elemen (%at.)	14,34
Rasio Sn : Nb/Sn (%)	25
Rasio Sn : Nb/Sn/Cu (%)	14
Rasio Sn : Sn/Cu (%)	25

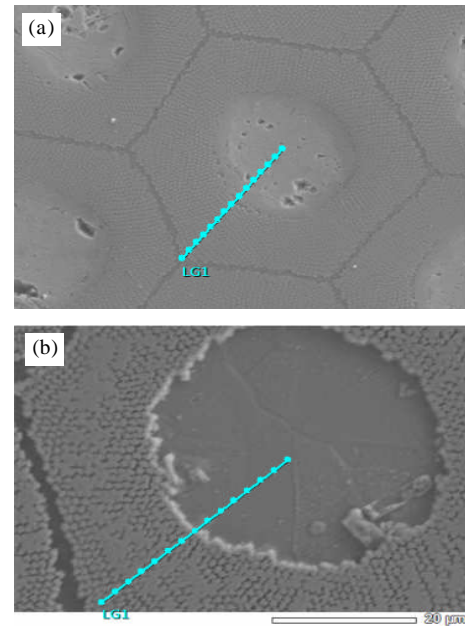
rapat. Tabung berisi potongan kawat tersebut dipanaskan dalam tungku dengan jeda waktu hingga mencapai kondisi isothermal yang dimaksud selama satu jam. Kemudian pemanasan dilakukan pada suhu 450 °C selama 72 jam. Terakhir, tabung dikeluarkan dari tungku setelah suhu tungku mendingin.

Struktur mikro dan distribusi unsur diamati dengan *Scanning Electron Microscope (SEM)* dan *Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy (EDS)*, sedangkan evolusi fasa tidak dapat diamati menggunakan *X-Ray Diffraction (XRD)* karena selongsong kawat yang terbuat dari Cu cukup tebal, sehingga *peak* unsur-unsur lain yang terdapat pada kawat tidak muncul dalam difraktogram. Oleh sebab itu penentuan fasa dilakukan dengan menggunakan diagram kesetimbangan fasa dari literatur. Adapun sub-elemen yang diamati adalah sub-elemen di bagian tengah kawat. Komposisi kimia di dapat dengan menggunakan *line scanning-EDS* yang diukur dari ujung diagonal sub-elemen hingga mencapai wilayah inti Sn pada sub-elemen tersebut.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Pengamatan Perubahan Komposisi

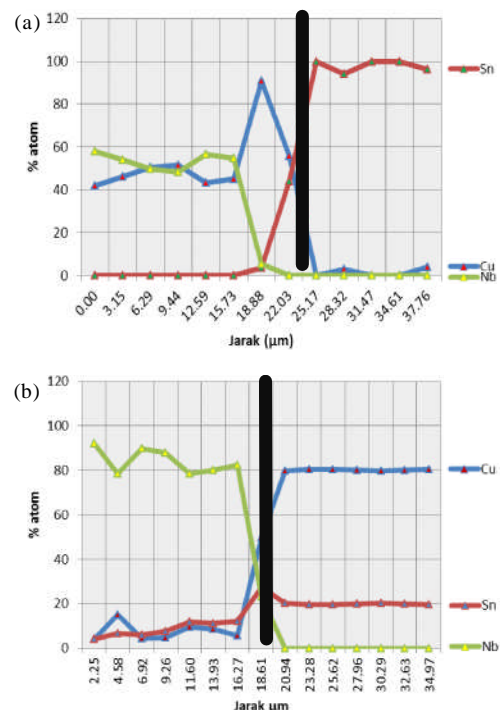
Hasil foto *Scanning Electron Microscope (SEM)* dan analisis unsur *Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy (EDS)*, ditunjukkan berturut-turut pada Gambar 2 dan Gambar 3. Pada Gambar 2 ditunjukkan tampak lintang kawat superkonduktor sebelum dan sesudah pemanasan. Terlihat perubahan struktur mikro pada kawat tersebut akibat proses pemanasan. Pada Gambar 3 ditunjukkan perubahan distribusi atom Sn dan Nb akibat proses pemanasan. Pada gambar tersebut sumbu-x (absis) adalah jarak yang diukur dari diagonal sub-elemen segi enam seperti ditunjukkan pada Gambar 2, dan sumbu-y (ordinat) adalah nilai persentase atom. Terlihat sebelum dipanasi distribusi atom Sn berada di sisi kanan batas antar muka (garis hitam) yang



Gambar 2. (a). Kawat sebelum pemanasan dan (b). Setelah pemanasan pada suhu 450 °C selama 72 jam.

menunjukkan atom Sn berada di inti sub-elemen kawat. Sedangkan komposit Nb-Cu berada di sisi sebelah kiri batas antar muka. Setelah kawat mengalami pemanasan pada suhu 450 °C selama 72 jam maka terjadi difusi atom-atom Sn dari sisi kanan batas antar muka menuju sisi kiri batas antar muka, yakni atom-atom Sn berdifusi menuju atom-atom Cu dan komposit Nb-Cu.

Adapun Tabel 2 menunjukkan detail distribusi unsur kawat superkonduktor akibat perlakuan panas yang mengacu pada sisi kiri batas antar muka



Gambar 3. Distribusi Sn dan Nb, (a). Sebelum dipanasi dan (b). Setelah dipanasi 450 °C selama 72 jam.

Tabel 2. Distribusi unsur kawat superkonduktor akibat pemanasan pada suhu 450 °C selama 72 jam (di sisi kiri batas antar muka).

Jarak	Cu (% at.)	Sn (% at.)	Nb (% at.)
2,25	4,14	3,92	91,94
4,58	15,07	6,53	78,40
6,92	4,23	5,95	89,82
9,26	4,66	7,57	87,77
11,60	9,68	11,70	78,62
13,93	8,49	11,31	80,20
16,27	5,66	12,05	82,29
18,61	49,67	27,31	23,02

Gambar 3(b). Tampak bahwa atom-atom Sn setelah dipanasi keluar dari inti sub-elemen kawat menuju komposit Nb-Cu, sedangkan atom-atom Nb tidak berpindah. Apabila ditinjau dari kekuatan ikatan logam, data menunjukkan bahwa ikatan logam Nb lebih besar dari pada ikatan logam Sn. Hal tersebut juga dapat dilihat dari titik leleh logam Nb dan Sn yaitu berturut-turut 2477 °C dan 231,93 °C [12]. Dapat dianalisis bahwa pada suhu 450 °C logam Sn sudah meleleh sehingga logam Sn mampu berdifusi ke dalam matriks komposit Cu-Nb padat dengan mekanisme difusi padat [9].

Sesuai dengan *Hume-Rothery rule*, Sn mampu untuk berdifusi dan mensubstitusi Cu dalam kristal FCC Cu. Hal tersebut karena perbedaan ukuran atom Sn dengan Cu kurang dari 15 % [13]. Valensi Sn yang lebih tinggi dari valensi Cu akan memudahkan Sn terlarut ke dalam Cu membentuk larutan padat tanpa mengubah struktur *fcc* Cu. Perbedaan keelektronegatifan antara Sn dan Cu kemudian menyebabkan Sn dan Cu mampu berikatan membentuk senyawa intermetalik [14]. Berbagai fasa intermetalik Sn-Cu yang terbentuk sepanjang pemanasan berperan menghantarkan Sn ke Nb.

Sebagaimana Sn dengan Cu, Sn juga mampu berinteraksi dengan Nb membentuk larutan padat maupun intermetalik [15]. Pada konsentrasi rendah Sn larut ke dalam kristal BCC Nb membentuk larutan padat α -Nb. Seiring dengan peningkatan kadar Sn maka terbentuk senyawa intermetalik Sn-Nb yang struktur kristalnya berbeda sama sekali dengan struktur α -Nb yaitu Sn-Nb berupa BCC Sn dan rantai orthogonal Nb pada setiap bidang muka BCC Sn tersebut [5]. Tabel 2 juga menunjukkan di sisi kiri batas antar muka terdapat tiga unsur sekaligus, yakni Cu, Sn, Nb. Berdasarkan uraian tersebut maka dapat diprediksi bahwa keberadaan Sn di sisi kiri batas antar muka tidak hanya sekedar berpindah posisi melainkan juga Sn tersebut berinteraksi

Tabel 3. Perbandingan komposisi Sn terhadap Nb

Jarak	Sn (% at.)	Nb (% at.)	Sn (% wt.)	Nb (% wt.)
2,25	3,6	96,4	4,59	95,41
4,58	5,8	94,2	7,33	92,67
6,92	5,8	94,2	7,23	92,77
9,26	7,4	92,6	9,31	90,69
11,60	11,9	88,1	14,72	85,28
13,93	11,4	88,6	14,17	85,83
16,27	12,2	87,8	15,06	84,94
18,61	48,6	51,4	54,74	45,26

dengan Cu maupun dengan Nb. Dari analisis jumlah Sn tersebut, diprediksi sebagian Sn tertahan di matriks Cu dan berinteraksi membentuk larutan padat Cu dengan kelarutan maksimal Sn-Cu 10 %, sedangkan sisa dari Sn tersebut berinteraksi dengan Nb. Prediksi tersebut didasarkan pada fakta bahwa secara kuantitatif jumlah Cu yang ada di sebelah kiri batas antar muka melebihi jumlah kebutuhan Cu sebagai katalis yang berada di batas butir A15 Nb₃Sn, yakni 2-3%at.

Asumsi Sn berinteraksi membentuk larutan padat Cu adalah maksimal 10 %at. Sn tidak berinteraksi membentuk intermetalik dengan Cu karena pada sisi kiri bidang batas bukanlah daerah yang kaya dengan unsur Sn, dan juga perhitungan komposisi elemen Sn yang ada tidak memungkinkan terbentuk intermetalik dengan sejumlah Cu yang tersedia, baik Cu₆Sn₅ (η) ataupun Cu₃Sn (ϵ). Namun terdapat pengecualian pada jarak pengamatan 18,61 μ m. Sehingga rasio keberadaan Sn terhadap Nb (tanpa Cu) dapat ditunjukkan pada Tabel 3. Diagram fasa Sn-Nb dapat dimanfaatkan untuk memprediksikan fasa yang paling stabil secara termodinamis [5]. Dari diagram fasa Sn-Nb tersebut dapat dianalisis bahwa pada suhu 450 °C dan rentang komposisi Sn 18 hingga 25 %at. dapat terbentuk Nb₃Sn. Demikian pula pada komposisi Sn di bawah 18 %at. Namun pada daerah dengan komposisi Sn kurang dari 18 %at. sifat superkonduktivitas Nb₃Sn yang terbentuk kurang baik [5]. Hasil penelitian sebelumnya menunjukkan bahwa pada komposisi Sn 5 %at. nilai suhu kritis (T_c) yang diperoleh kurang dari 16 K [5]. Hal tersebut dimungkinkan karena penyusunan larutan padat Nb-Sn belum tersusun sempurna membentuk intermetalik A15 Nb₃Sn. Selanjutnya kaidah *Lever-Rule* dapat digunakan untuk menghitung komposisi campuran dari fasa larutan padat α -Nb dan fasa larutan padat tertata Nb₃Sn *less-superconducting* dengan memanfaatkan diagram fasa tersebut seperti ditunjukkan pada Tabel 4. Dapat dianalisis bahwa terjadi pembentukan fasa Nb₃Sn yang jumlahnya menurun dan α -Nb yang jumlahnya meningkat seiring dengan jaraknya yang mendekati inti sub-elemen Sn.

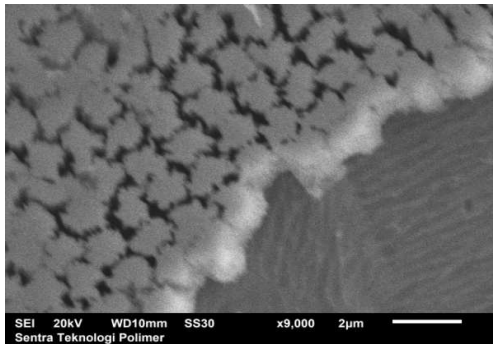
Pengamatan Strukturmikro

Hasil foto SEM tampak lintang interkoneksi filamen pada sub-elemen kawat setelah pemanasan pada suhu 450 °C selama 72 jam ditunjukkan pada Gambar 4. Seperti dijelaskan sebelumnya bahwa filamen-filamen Nb pada kawat sebelum mengalami pemanasan terpisah dengan sempurna dibatasi oleh matriks Cu. Namun, setelah kawat mengalami pemanasan tampak filamen mengalami pembesaran ukuran. Beberapa sisi tampak terbentuk *bridging* sehingga terjadi interkoneksi filamen akibat pertumbuhan struktur A15 Nb₃Sn. Hal ini tentu tidak diharapkan karena diameter efektif filamen yang semakin besar menentukan penurunan kemampuan kawat superkonduktor [5]. Hal tersebut dapat terjadi karena

Tabel 4. Komposisi berbagai fasa yang terbentuk.

Jarak	α -Nb	% wt, Nb ₃ Sn	
		Less-Superconducting	Superconducting
2,25	79,06	20,94	-
4,58	66,52	33,48	-
6,92	66,98	33,02	-
9,26	57,49	42,51	-
11,60	32,78	67,22	-
13,93	35,29	64,71	-
16,27	31,23	68,77	-
18,61	-	-	100%*

*, Asumsi Sn masih tertahan di matriks Cu membentuk larutan padat dan intermetalik



Gambar 4. Foto SEM tampak lintang interkoneksi filamen pada sub-elemen kawat setelah pemanasan.

adanya perubahan kisi kristal dalam filamen tersebut. Awalnya filamen adalah Nb dengan struktur kristal BCC dan parameter kisi $a = 0,33$ nm [5]. Pada saat pembentukan larutan padat α -Nb tidak terjadi perubahan kisi yang signifikan karena larutan padat tidak mengubah struktur kristal larutan induk dan perbedaan ukuran Sn dengan Nb hanya 4 %. Setelah terbentuk senyawa A15 Nb₃Sn struktur kristal berubah menjadi Sn BCC dengan rantai *orthogonal* Nb di setiap bidang muka *bcc* yang parameter kisi senyawa tersebut menjadi $a = 0,529$ nm [5]. Sehingga ketika terbentuk senyawa A15 Nb₃Sn terjadi perubahan kisi hampir dua kali dari kisi Nb. Hal tersebut menjadikan filamen tampak menjadi besar bahkan sebagiannya menyatu atau membentuk *bridging*.

KESIMPULAN

Pemanasan pada kawat superkonduktor IT-RRP Cu-Nb-Sn dengan suhu 450 °C selama 72 jam dapat menghasilkan fasa A15 Nb₃Sn. Namun, perlakuan panas tersebut belum optimal untuk menghasilkan lapisan intermetalik A15 Nb₃Sn yang homogen sepanjang radial sub-elemen kawat. Evolusi fasa yang terjadi belum mengubah seluruh Nb menjadi intermetalik A15 Nb₃Sn dan masih terdapat larutan padat α -Nb, larutan padat Nb₃Sn, dan juga masih ada Sn yang tertahan pada intermetalik Cu. Oleh sebab itu, jarak efektif filamen Nb pada kawat ini perlu diperlebar untuk menghindari interkoneksi filamen A15 Nb₃Sn.

DAFTAR ACUAN

- [1]. WILLIAM D. CALLISTER, *Material Science and Engineering An Introduction (4th Ed.)*, Canada, John Wiley & Sons, (1997)
- [2]. B. T. MATTHIAS, T. H. GEBALLE, S. GELLER and E. CORENZWITT, *Phys. Rev.*, **95** (1954) 1453
- [3]. SHOBHIT BHARTIYA, B. TECH, A15 Stoichiometry and Grain Morphology In Rod-In-Tube and Tube Type Nb Sn Strands; Influence of Strand Design, Heat Treatments and Ternary Additions, *Master Thesis*, Ohio State University, (2010)
- [4]. K. WATANABE, S. AWAJI, K. KATAGIRI, K. NOTO, *IEEE Transactions on Magnetics*, **30** (1994) 1871-1874
- [5]. ARNO GODEKE, *Performance Boundaries in Nb₃Sn Superconductors*, Enschede, Print Partners Ipskamp, (2005)
- [6]. H. MULLER and TH. SCHNEIDER, *Journal Cryogenics*, **48** (2008) 323-330
- [7]. P. J. LEE, D. C. LARBALESTIER, *Cryogenics*, **48** (2008) 283-292
- [8]. MICHAEL CYROT and DAVOR PAVUNA, *Introduction to Superconductivity and High-T_c Materials*, Singapore: World Scientific, (1992)
- [9]. A. PAUL, T. LAURILA and V. VUORINEN, *Microstructure, Diffusion and Growth Mechanism of Nb₃Sn Superconductor by Bronze Technique*, Chapter 3 in Book Titled "Superconductor", Edited by ADIR MOYSES LUIZ, Sciyo, (2010) 47-68
- [10]. SUDARYATNO SUDIRHAM dan NING UTARIS., *Mengenal Sifat Material*, Darpublic, Bandung, (2012)
- [11]. A. N.V. SWARI, A. HANGGA, D. D. RISANTI, Simulation of Duplex Heat Treatment Nb₃Sn Compounds in Cu-Nb-Sn Superconducting Multifilamentary Wire, *International Conference on Chemical and Materials Engineering 2012*, Universitas Diponegoro, Semarang, (2012)
- [12]. DAVID A. PORTER, *Phase Transformations in Metals and Alloys, 3rd Ed.* CRC Press, (2008)
- [13]. R.E. SMALLMAN, R.J. BISHOP, *Modern Physical Metallurgy and Materials Engineering*, Butterworth Heinemann, (1999)
- [14]. LAWRENCE H., VAN VLACK, *Ilmu dan Teknologi Bahan*, Penerbit Erlangga, (1994)
- [15]. MICHAEL F. ASHBY, *Engineering Materials and Processes Desk Reference*, Elsevier, (2009)