

PENGARUH PENAMBAHAN PERAK OKSIDA TERHADAP RAPAT ARUS KRITIS SUPERKONDUKTOR Tc TINGGI $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$

Didin S. Winatapura, Wisnu Ari Adi

Pusat Penelitian dan Pengembangan Iptek Bahan BATAN, Serpong

Kawasan PUSPIPTEK Serpong – Tangerang

E-mail : Didinsw@batan.go.id

ABSTRAK

PENGARUH PENAMBAHAN OKSIDA PERAK TERHADAP RAPAT ARUS KRITIS PADA SUPERKONDUKTOR Tc TINGGI $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$. Superkonduktor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}/\text{Ag}_2\text{O}$ telah dibuat melalui reaksi padatan dengan campuran Ag_2O masing-masing 0, 5, 10, dan 20 persen berat dari setiap 2 gram prekursor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$. Pencampuran dilakukan di dalam *mortal agate*, yang kemudian diikuti dengan kalsinasi pada 900 °C selama 4 jam dan *sintering* pada 940 °C selama 10 jam. Karakterisasi dilakukan dengan difraksi sinar x, *scanning electron microscopy* dan teknik *probe* empat titik. Hasil pengukuran cuplikan menunjukkan bahwa superkonduktor Tc tinggi $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ dan $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}/\text{Ag}_2\text{O}$ memiliki struktur kristal orthorombik yang dicirikan oleh adanya puncak pola difraksi (003), (110/103), (005), (113), dan (006). Temperatur kritis (Tc) $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ dan $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}/\text{Ag}_2\text{O}$ diperoleh masing-masing 89 K dan 88 K dan rapat arus kritis meningkat dengan kenaikan penambahan Ag_2O .

Kata kunci : Superkonduktor, temperatur kritis, rapat arus kritis.

ABSTRACT

EFFECT OF SILVER OXIDE ADDITION THROUGH THE CRITICAL CURRENT DENSITY ON $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ HIGH Tc SUPERCONDUCTOR. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}/\text{Ag}_2\text{O}$ superconductor has been done by using of solid states reaction. Of 0, 5, 10, and 20wt % of silver oxide were mixed with 2 gram of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ precursors. The mixing was done in mortar agate, and then followed by calcinations at 900 °C for 4 hours and sintering at 940 °C for 10 hours. The characterization was done using x-ray diffraction, scanning electron microscopy, and four point probe technique. The result shows that $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ high Tc superconductor has an orthorhombic crystal structure that featured by diffraction pattern peaks at (003), (110/103), (005), (113), and (006). The critical temperature (Tc) of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ and $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}/\text{Ag}_2\text{O}$ were obtained of 89 K and 88 K respectively, and critical current density increases with increasing addition of Ag_2O .

Key words : Superconductor, critical temperature, critical current density.

PENDAHULUAN

Kegiatan intensif yang telah dilakukan untuk memperoleh superkonduktor Tc tinggi $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ (STT Y-Ba-Cu) ditempuh melalui dua metoda, yakni metoda reaksi kimia (*wet chemistry method*) dan metoda reaksi padatan (*solid state method*). Metoda reaksi kimia dilakukan melalui pelarutan secara kimia yang kemudian dekomposisi/reaksi pada temperatur tinggi, misalnya dilakukan melalui pelarutan garam cair NH_4NO_3 [1], pelarutan garam cair urea+ NH_4OH [2], dan pelarutan garam nitrat+gliserol [3] yang telah berhasil dilakukan. Reaksi padatan antara bahan baku, misalnya mempersiapkan STT Y-Ba-Cu dari reaksi BaCO_3 , Y_2O_3 , dan CuO yang dipanasi pada $T = 875-950$ °C.

Dengan ditemukannya STT Y-Ba-Cu pada Tc = 90 K telah membangkitkan gairah dan minat yang besar bagi para peneliti baik dari dalam maupun luar negeri

untuk berusaha mendapatkan Tc, Jc, dan sifat mekanik yang lebih tinggi lagi. Penelitian terdahulu menunjukkan bahwa STT Y-Ba-Cu memiliki kelemahan dengan sifat mekanik rendah (*brittle*) dan besarnya rapat arus kritis (Jc) terbatas [5]. Salah satu cara yang dipromosikan guna mengatasi kelemahan tersebut adalah dengan memadukan partikel perak (Ag) pada matrik STT Y-Ba-Cu. Perak (Ag) tidak membentuk senyawa dengan matrik STT Y-Ba-Cu tetapi menempati celah kosong (*voids*) di antara butiran. Hal ini diperkirakan dapat menurunkan porositas dan memperbaiki kontak antar butir serta dapat menurunkan *residual stress* yang dihasilkan oleh ekspansi butiran. Akibatnya, rapat arus kritis dan ketahanan terhadap retakan (*cracks*) juga meningkat.

Bahan STT Y-Ba-Cu dengan Jc besar dan *strength* tinggi merupakan persyaratan utama untuk dapat

diaplikasikan pada industri komersial saat ini. Untuk *high field* lebih besar dari 1 Tesla, antara lain untuk aplikasi pada *AC generators, motors, fusion, energy storage, magnetohydrodynamic* (MHD), dan untuk *low field* lebih kecil dari 1 Tesla, antara lain untuk aplikasi pada *transmission cable, transformers, fault current limiter* (FCL) [5].

Hail penelitian terdahulu misalnya Sing dkk [4] menyatakan bahwa kekuatan (*strength*) dan rapat arus kritis (*Jc*) meningkat dua kali lipat pada senyawa 123 yang dipadukan dengan Ag. Demikian pula dengan kekerasan (*hardness*) dan *ductility* menunjukkan kenaikan yang diperhitungkan [6]. Akan tetapi parameter kisi dan temperatur kritis (*Tc*) tidak memperlihatkan kenaikan yang berarti [7].

Pada makalah ini disampaikan pembuatan komposit STT Y-Ba-Cu/Ag₂O dengan *route* padatan dari bahan baku BaCO₃, Y₂O₃, dan CuO yang bertujuan untuk mengetahui bukti secara eksperimen efek doping Ag₂O terhadap rapat arus kritis, *Jc* dan struktur mikronya.

TATA KERJA

a. Sintesis

Pembuatan STT Y-Ba-Cu/Ag₂O dilakukan melalui reaksi padatan (*solid state reaction*) menggunakan bahan baku BaCO₃, Y₂O₃, dan CuO dan dicampur-kan dengan Ag₂O untuk ukuran persen berat 0, 5, 10, dan 20.

Agar diperoleh campuran yang homogen, prekursor STT Y-Ba-Cu/Ag₂O digerus di dalam *mortal agate* selama kurang lebih 3 jam, diikuti kalsinasi di dalam tungku udara biasa pada 900 °C selama 4 jam dengan kenaikan dan penurunan temperatur 300 °C/jam. Cuplikan yang telah dikalsinasi digerus kembali selama 1 jam, dicetak berbentuk pelet dengan ukuran diameter 1,5 cm, tebal 2-3 mm, kemudian diikuti dengan *sintering* di dalam tungku udara biasa pada 940 °C selama 10 jam dengan kenaikan dan penurunan temperatur 60 °C/jam. Secara skematik diagram alir pembuatan STT Y-Ba-Cu/Ag₂O ditunjukkan pada Gambar 1. Pada Tabel 1, diperlihatkan kondisi penyiapan cuplikan STT Y-Ba-Cu dan STT Y-Ba-Cu/Ag₂O.

Tabel 1. Kondisi penyiapan cuplikan-1, cuplikan-2, cuplikan-3, dan cuplikan-4. Identifikasi Struktur Kristal dan Pengamatan Struktur Mikro.

| Kode cuplikan | Ag ₂ O (% berat) | Perlakuan panas (°C) | | Karakterisasi |
|---------------|-----------------------------|----------------------|-----------|-----------------------------------|
| | | Kalsinasi | Sintering | |
| Cuplikan-1 | 0 | 900 | 940 | NRD, SEM, <i>Jc</i> dan <i>Tc</i> |
| Cuplikan-2 | 5 | 900 | 940 | NRD, SEM, <i>Jc</i> dan <i>Tc</i> |
| Cuplikan-3 | 10 | 900 | 940 | NRD, SEM, <i>Jc</i> dan <i>Tc</i> |
| Cuplikan-4 | 20 | 900 | 940 | NRD, SEM, <i>Jc</i> dan <i>Tc</i> |

b. Identifikasi Struktur Kristal dan Pengamatan Struktur Mikro

Struktur kristal STT Y-Ba-Cu dan STT Y-Ba-Cu/Ag₂O diukur dengan difraksi sinar x (XRD) menggunakan sumber radiasi CuKα dari daerah 2θ = 20° – 80° pada I = 30 mA dan tegangan 30 KV. Mikrostruktur cuplikan diamati dengan *scanning electron microscopy* (SEM) dan EDS.

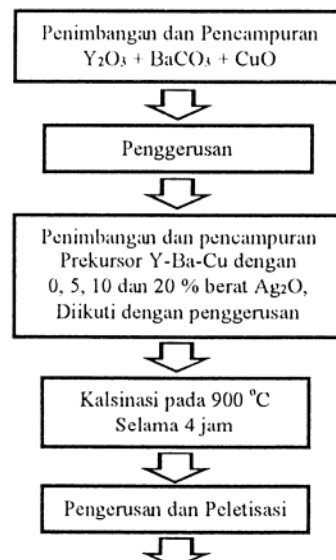
c. Pengukuran Temperatur Kritis (*Tc*) dan Rapat Arus kritis (*Jc*)

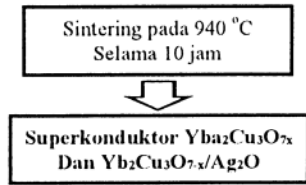
Pengukuran *Tc* dan *Jc* dilakukan dengan metoda *probe* empat titik sebagai berikut :

- Disiapkan cuplikan berbentuk pelet dengan ukuran diameter 1,5 cm dan ketebalan 2 mm.
- Pelet tersebut dibor pada empat titik berjarak masing-masing 2 mm dengan diameter lobang 0,5 mm. Ke dalam lobang dimasukkan kawat perak berukuran diameter 0,5 mm, direkatkan dengan pasta perak dan kemudian dikeringkan di dalam tungku.
- Satu pasang kawat perak dihubungkan dengan sumber arus DC dari *range* 0 – 20 A, dan satu pasang kawat perak lainnya dihubungkan dengan mikrovoltmeter.
- Pengukuran *Tc* dan *Jc* cuplikan dilakukan menggunakan peralatan *probe* empat titik yang sudah standar dan kemudian dihubungkan dengan komputer.
- Cuplikan diukur pada kondisi temperatur nitrogen cair.

Diagram Alir Sintesis STT Y-Ba-Cu dan STT Y-Ba-Cu/Ag₂O

Diagram alir sintesis pembuatan senyawa STT Y-Ba-Cu dan STT Y-Ba-Cu/Ag₂O dengan cara padatan ditunjukkan pada Gambar 1.





Gambar 1. Secara skematik diagram alir pembuatan superkonduktor STT Y-Ba-Cu dan STT Y-Ba-Cu/Ag₂O melalui metoda reaksi padatan.

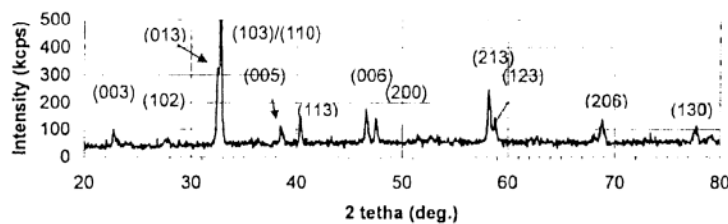
HASIL DAN PEMBAHASAN

Pada saat pengujian efek Meissner terlihat bahwa cuplikan-1 melayang di atas medan magnet permanen SmCo setinggi kira-kira 3 mm selama 30-40 detik. Begitu pula cuplikan-2, cuplikan-3, dan cuplikan-4 melayang tetapi lebih rendah dan waktunya relatif lebih pendek dari 30 detik. Hal ini menyatakan bahwa pada kondisi nitrogen cair, cuplikan-1 sampai cuplikan-4 memiliki perilaku superkonduktif. Hal tersebut dapat diketahui dengan jelas dari data pengukuran hambatan listriknya.

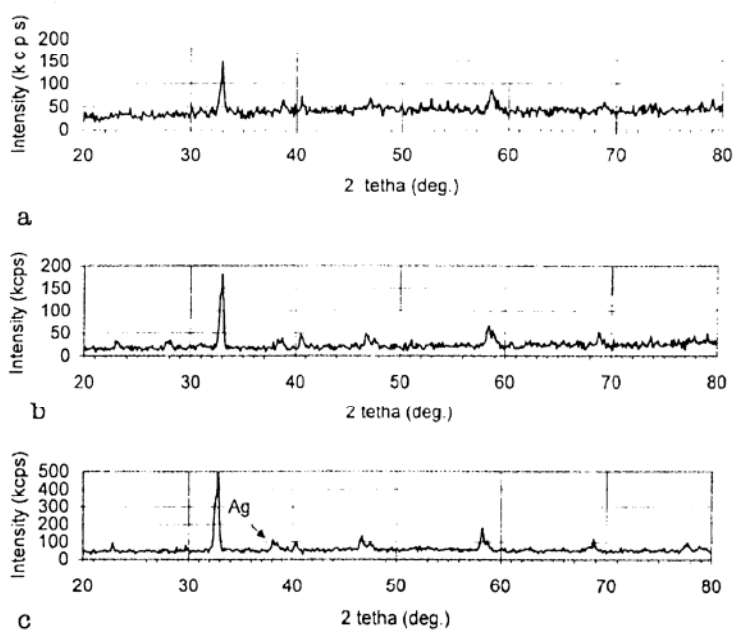
Pola difraksi sinar-x dari cuplikan-1 menghasilkan puncak-puncak difraksi yang tajam, hal ini menyatakan bahwa senyawa oksida Y-Ba-Cu cuplikan-1 telah mengkristal dengan baik. Dari pengamatan sebelumnya [3,4] diperoleh bahwa cuplikan berfasa tunggal memiliki bentuk kristal orthorombik dan grup ruang Pmmn (No. 47).

Dengan penambahan Ag₂O terlihat struktur kristalnya tidak berubah, akan tetapi tidak memiliki puncak intensitas yang tajam seperti pada cuplikan-1, ditunjukkan pada Gambar 3a, b, c, dan d. Hal ini menyatakan bahwa perak tidak membentuk senyawa dengan matrik Y-Ba-Cu, tetapi terdistribusi secara acak. Diperkirakan bahwa fasa Ag (111) teramati pada cuplikan-4 pada sudut sekitar 38,758° yang berimpit dengan bidang (005), seperti pada Gambar 3d.

Oksida Y-Ba-Cu dan Y-Ba-Cu/Ag₂O memperlihatkan perilaku superkonduktif, hal ini dapat dilihat pada hasil pengukuran hambatan listrik terhadap suhu. Pada temperatur kamar (300 K) hambatan listrik cuplikan-1 sekitar $5,13 \times 10^{-2} \Omega$. Harga hambatan listrik



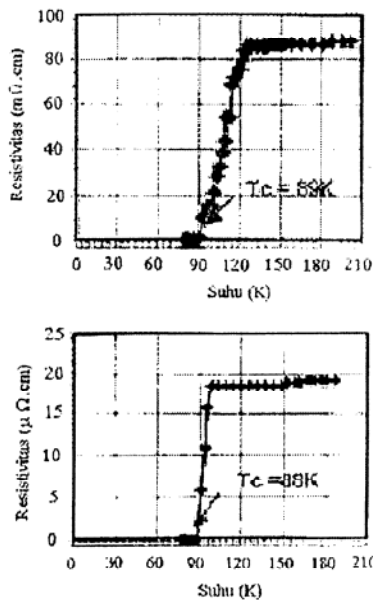
Gambar 2. Pola difraksi sinar-x superkonduktor Tc tinggi $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ dari cuplikan-1, yang dibuat dengan metoda reaksi padatan.



Gambar 3. Pola difraksi sinar-x superkonduktor $YBa_2Cu_3O_{7-x}/Ag_2O$ dari (a) cuplikan-2, (b) cuplikan-3, dan (c) cuplikan-4.

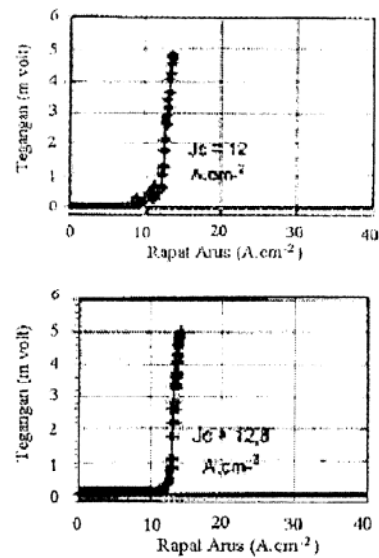
kemudian turun secara linier sejalan dengan turunnya suhu hingga kira-kira 129 K. Pada pendinginan selanjutnya, hambatan listrik turun secara tiba-tiba hingga mencapai transisi kritis superkonduksi. Titik mulai terjadi transisi kritis (*onset point*) dan titik hambatan nol listrik dapat ditentukan berturut-turut pada suhu 129 K dan 89,0 K seperti pada Gambar 4a. Untuk cuplikan-2 titik transisi kritis dan titik hambatan nol diperoleh berturut-turut pada suhu 103 K dan 88 K.

Dari pengamatan terdahulu [7, 8] memperlihatkan bahwa suhu kritis, T_c baik STT Y-Ba-Cu dan STT Y-Ba-Cu/Ag₂O yang dibuat melalui metoda garam uretan tidak memperlihatkan perbedaan yang berarti. Hal ini menyatakan bahwa Ag tidak menggeser kedudukan Y dalam matrik, sehingga jarak antara Cu(2) dan O(3) tidak berubah.

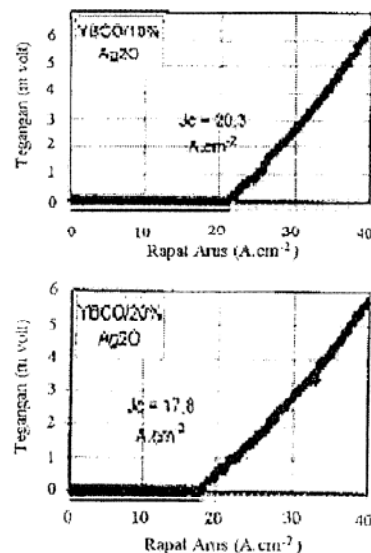


Gambar 4. Resistivitas hambatan listrik terhadap suhu pada superkonduktor T_c tinggi dari (a) cuplikan-1 dan (b) cuplikan-2.

Rapat arus kritis cuplikan-1 yang diperoleh dari plot kurva tegangan terhadap rapat arus sekitar 12 A.cm⁻². Rapat arus kritis mengalami sedikit kenaikan menjadi 12,8 A.cm⁻² dengan bertambahnya Ag₂O, seperti pada Gambar 5a dan b. Bahan memperlihatkan perilaku semikonduktif setelah melalui arus kritis superkonduktif. Kemudian rapat arus kritis meningkat hingga mencapai 20,3 A.cm⁻² dengan penambahan kandungan Ag₂O hingga 10% berat, akan tetapi kemudian turun kembali ke harga 17,8 A.cm⁻². Setelah melewati arus kritis, tegangan naik secara linier terhadap arus yang diberikan. Hal ini memperlihatkan bahwa bahan memiliki perilaku logam setelah melewati rapat arus kritis superkonduktif, seperti pada Gambar 6a dan b.

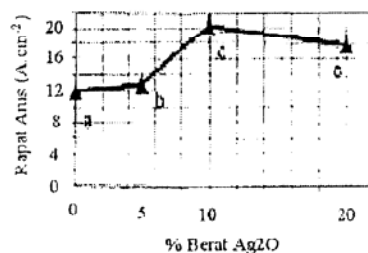


Gambar 5. Kurva tegangan terhadap rapat arus superkonduktif T_c tinggi (a) cuplikan-1 dan (b) cuplikan-2.



Gambar 6. Plot kurva antara rapat arus kritis (J_c) vs persentase Ag₂O pada superkonduktor T_c tinggi (a) cuplikan-1, (b) cuplikan-2, (c) cuplikan-3, dan (d) cuplikan-4.

Plot kurva rapat arus kritis terhadap penambahan perak oksida (Ag₂O) ditunjukkan pada Gambar 7. Terlihat,



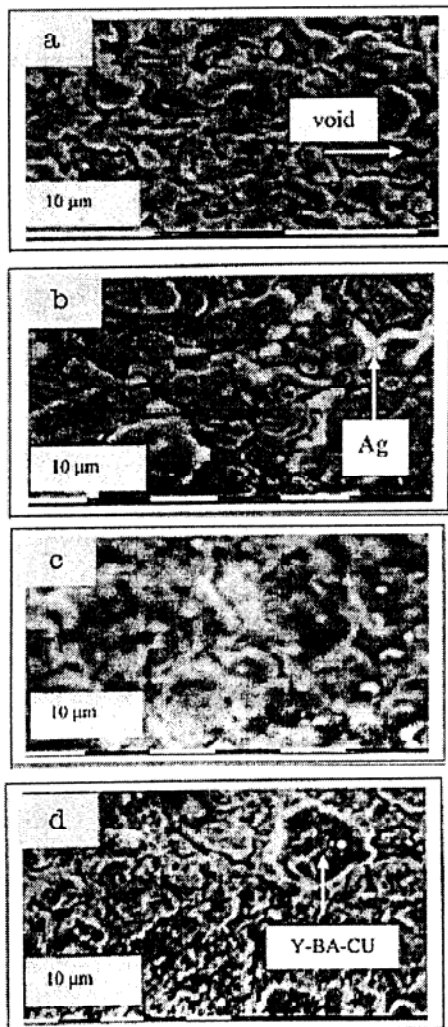
Gambar 7. Morfologi permukaan superkonduktor T_c tinggi (a) cuplikan-1, (b)cuplikan-2, (c) cuplikan-3 dan (d) cuplikan-4

rapat arus kritis meningkat dengan penambahan perak oksida (Ag_2O) hingga penambahan 10 % berat, akan tetapi kemudian turun kembali dengan penambahan Ag_2O selanjutnya. Data hasil pengukuran rapat arus dan temperatur kritis untuk cuplikan-1, cuplikan-2, cuplikan-3, dan cuplikan-4 dicantumkan dalam Tabel 2.

Tabel 2. Hasil pengukuran temperatur dan rapat arus kritis cuplikan-1, cuplikan-2, cuplikan-3, dan cuplikan-4 menggunakan probe empat titik.

| Kode cuplikan | Ag_2O (% berat) | Fraksi volume (%) | Tc (K) | Jc ($A.cm^{-2}$) |
|---------------|-------------------|-------------------|--------|--------------------|
| Cuplikan-1 | 0 | 99 | 89 | 12,0 |
| Cuplikan-2 | 5 | 90 | - | 13,8 |
| Cuplikan-3 | 10 | 97 | 88 | 20,3 |
| Cuplikan-4 | 20 | 94 | - | 17,8 |

Hasil pengamatan cuplikan menggunakan *scanning electron microscope* (SEM) diperlihatkan pada Gambar 7 dengan komposisi penambahan persen berat Ag_2O (a) 0 %, (b) 5 %, (c) 10 %, dan (d) 20 %. Pada Gambar tersebut tampak bahwa Ag secara acak terdistribusi merata di antara butiran matrik Y-Ba-Cu.



Gambar 8. Morfologi permukaan superkonduktor Tc tinggi (a). cuplikan-1, (b). cuplikan-2, (c). cuplikan-3, (d). cuplikan-4

Hasil pengamatan ini didukung dengan analisis dengan menggunakan EDS (*energy disperse spectroscopy*) melalui metoda *back scattering electron*. Analisis tersebut menunjukkan bahwa yang berwarna terang diidentifikasi sebagai perak Ag, yang gelap adalah kekosongan (*voids*) sedangkan yang berwarna agak gelap diidentifikasi sebagai matrik STT Y-Ba-Cu. Pada Gambar 7 terlihat bahwa porositas atau *voids* berkurang seiring dengan meningkatnya persentase Ag_2O . Berkurangnya porositas ini menyebabkan peningkatan titik singgung (*link*) yang cukup baik sehingga akan meningkatkan Jc bahan ini. Namun pada penambahan 20 % Ag_2O , Jc menjadi turun. Terlihat pada Gambar 7(d) di atas Ag_2O berubah menjadi sumber-sumber *weak link* pada batas-batas butir. *Weak link* ini mengakibatkan terjadi hamburan elektron yang cukup banyak sehingga terjadi disipasi panas yang cukup tinggi pada akhirnya akan menurunkan Jc bahan tersebut.

KESIMPULAN

Penambahan Ag_2O terbukti tidak membentuk senyawa dengan matrik superkonduktor Tc tinggi $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ dan temperatur transisi kritis (Tc) superkonduktor Y-Ba-Cu dan Y-Ba-Cu/ Ag_2O tidak mengalami perubahan.

Peningkatan rapat arus kritis ini disebabkan karena berkurangnya porositas pada bahan tersebut. Rapat arus kritis Jc tertinggi terjadi pada penambahan 10 % berat Ag_2O sebesar 20,3 $A.cm^{-2}$ dengan temperatur tansiisi kritis Tc = 88 K.

UCAPAN TERIMAKASIH

Terimakasih diucapkan kepada Bapak DR Wuryanto selaku Kepala P3IB dan DR Ridwan selaku Kepala Bidang Zat Mampat atas segala kepercayaan dan dukungannya, Drs. Bambang Sugeng, M.T. atas bantuannya mengkarakterisasi dengan difraksi sinar-x, dan Ari Handayani, B.E. atas bantuannya mengkarakterisasi dengan menggunakan SEM.

DAFTAR ACUAN

- [1]. WURYANTO, *Superkonduktor Y-Ba-Cu-O (123) dengan Media Garam Cair dan (Molten Salt) NH_4OH* , Pros. Seminar Nasional Ke II Kimia dalam Industri dan Lingkungan, Ambarukmo Place Hotel, Yogyakarta 15-16 Nopember 1993, 55.
- [2]. WURYANTO, *Sintesis Superkonduktor $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ Melalui Prekursor Hasil Pirolisis Garam Cair Urea dan Ammonium Nitrat*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, Yogyakarta, 25-28 April 1994.
- [3]. INDRA GUNAWAN, DIDIN S. WINATAPURA dan WURYANTO, *Majalah Ilmiah LUK-BPP*

Teknologi, **1** (1995) 45.

- [4]. J.P. SINGH, H.J. LEO, R.B. PEOPEL dan G.T. GOUDEY, *Effect of Silver Oxide Addition on the Mechanical and Superconducting Properties of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ Superconductors*.
- [5]. DAVID LAEBALESTIER, R.D. BLAUGHER, R.E. SCHWAL, R.S. SOKOLOWSKI, M. SUENAGA, dan O. WILLIS, *Panel Report on Power Application of Superconductivity in Japan and Germany*, World Technology Evaluation Centre, (1994).
- [6]. H.R. KHAN, T.L. FRANSCAVILLA, L.A. HEIN, C.S. PANDE, S.B. QADRY, R.J. SOVJEN Jr., S.A. WOEF, *Journal of Superconductivity*, **3** (1990)189.
- [7]. WURYANTO, PUDJI SULISWORO dan YUSTINUS P., *Sintesis Superkonduktor $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ - Ag Melalui Garam Cair Uretan, Disajikan pada Simposium Fisika Nasional XV dan Seminar ASPEN*, IKIP Surabaya, 11-13 Desember 1994.
- [8]. MARZUKI SILALAH, DIDIN S. WINATAPURA dan WURYANTO, *Pembuatan Keramik Komposit Superkonduktor $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ /Ag dengan Metoda Reaksi Kimia*, Dipresentasikan pada Seminar Sains dan Teknologi Nuklir, PPTN Bandung, 19-20 Maret 1997.