

# ITM-10: STUDI SIMULASI KURVA HISTERESIS BAHAN FERROELEKTRIK BERBASIS TEORI DINDING DOMAIN MENGGUNAKAN MODEL LANGEVIN DAN ISING SPIN

Hamid, D.Triyono\*

Ilmu Fisika, Pascasarjana Universitas Indonesia Salemba 4 Jakarta 10430

\*[djoko.triyono@ui.ac.id](mailto:djoko.triyono@ui.ac.id)

## Abstrak

Paper ini membicarakan model histeresis bahan ferroelektrik dengan meninjau teori dinding domain. Model dibuat melalui dua tahap. Pada tahap pertama membuat relasi anhisteresis Langevin dan Ising spin dengan memasukkan interaksi antar sel. Pada tahap kedua histeresis ditinjau dengan teori dinding domain. Kurva model divalidasi dengan kurva eksperimen bahan PMN-PT-BT [  $\text{Pb}(\text{Mg,Nb})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3\text{-BaTiO}_3$  ]. Diperoleh koefisien Pearson kurva model terhadap kurva eksperimen sebesar 0.9988. Dengan demikian kurva histeresis hasil simulasi adalah valid. Studi kurva histeresis bahan ferroelektrik PZT4, PZT5A, PZT5H, PMNT [  $\text{Pb}(\text{Mg,Nb})\text{TiO}_3$  ] kristal tunggal, BZT [  $\text{Ba}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$  ], bahan BT-BZ ( $\text{BaTiO}_3\text{-BaZrO}_3$ ) film tipis dan PZT [  $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$  ] memperoleh harga koefisien Pearson  $r^2$  lebih besar dari 0.97 untuk model Langevin maupun Ising spin. Hal ini menunjukkan model Langevin maupun Ising spin baik digunakan untuk studi kurva histeresis berbagai bahan ferroelektrik. Bahan PZ26 ( $\text{PbZrO}_3$ ) kurang baik menggunakan model berbasis dinding domain, karena kurvanya tidak simetri.

## Abstract

This paper addresses the modeling of hysteresis in ferroelectric materials through consideration of domain wall theory. The model is developed in two steps. In the first step, anhysteresis relation of Langevin and Ising spin is obtained with dipole interaction. In the second step, hysteresis is incorporated through consideration of domain wall theory. Curve model is validated through curve experiment PMN-PT-BT [  $\text{Pb}(\text{Mg,Nb})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3\text{-BaTiO}_3$  ] material. Pearson coefficient for curve model is more than 0.99. So curve model is valid. Curve hysteresis ferroelectric studies of PZT4, PZT5A, PZT5H, PMNT [  $\text{Pb}(\text{Mg,Nb})\text{TiO}_3$  ] single crystal, BZT [  $\text{Ba}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$  ], BT-BZ ( $\text{BaTiO}_3\text{-BaZrO}_3$ ) thin film and PZT [  $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$  ] thin film materials yields Pearson coefficient more than 0.97 for Langevin and Ising spin model. It shows that Langevin or Ising spin model is good for studying hysteresis curve of ferroelectric materials. PZ26 ( $\text{PbZrO}_3$ ) material is not appropriate with model based on domain wall theory, because of asymmetry curve.

**Keywords** : *ferroelectric, domain wall of ferroelectric, hysteresis of ferroelectric, Langevin model, Ising spin model*

## 1. PENDAHULUAN

Bahan ferroelektrik adalah bahan yang memiliki kelompok-kelompok dipol listrik yang arah momen dipol listriknya tertentu, atau disebut juga polarisasi spontan, meskipun tanpa medan listrik eksternal. Medan listrik / tegangan listrik yang diberikan pada bahan ferroelektrik menimbulkan polarisasi listrik pada bahan. Polarisasi pada bahan ferroelektrik juga menimbulkan regangan (*strain*) dan gaya tekan. Sebaliknya, bila bahan ferroelektrik diberi tekanan (*stress*), bisa menimbulkan tegangan listrik / medan listrik. Karakteristik yang dimiliki bahan ferroelektrik dimanfaatkan untuk berbagai aplikasi. Polarisasi pada bahan ferroelektrik dimanfaatkan untuk kapasitor dan memori *nonvolatile*. *Strain* dimanfaatkan untuk aktuator / penggerak. Tegangan listrik akibat *stress* yang diberikan

dimanfaatkan untuk sensor, pengukuran tekanan, dan getaran.

Kurva hubungan antara medan listrik eksternal dan polarisasi yang dihasilkan disebut dengan kurva histeresis. Aplikasi memori berdasarkan *switch* polarisasi dan hubungan medan listrik – polarisasi. Histeresis tidak diinginkan pada sensor presisi tinggi, aktuator, dan kapasitor [1]. Dengan demikian, kita membutuhkan model untuk kurva histeresis agar mendapatkan persamaan matematis hubungan medan listrik eksternal dan polarisasi untuk berbagai aplikasi dan membutuhkan pemahaman fisis agar bisa membuat bahan yang dibutuhkan. Untuk mengkaraktirasi kurva histeresis digunakan teori dinding domain dengan model Langevin dan Ising spin yang disusun oleh Ralph C Smith [2] yang analog dengan model Jiles Atherton pada ferromagnetik.

Penjelasan berikut tentang domain ferroelektrik dipelajari dari jurnal Dragan Damjanovic [1]. Daerah dari kristal dengan orientasi polarisasi spontan serba sama disebut domain ferroelektrik. Daerah antara dua domain disebut dinding domain. Dinding yang memisahkan domain-domain dengan orientasi polarisasi yang berlawanan disebut dinding 180<sup>0</sup> dan yang memisahkan daerah-daerah dengan polarisasi yang saling tegak lurus disebut dinding 90<sup>0</sup>. Dalam daerah dinding domain, polarisasi berubah dari satu

$$E_e = E + \alpha P \quad (1)$$

dimana  $\alpha = \frac{E_0}{P_s}$  yaitu parameter interaksi dipol listrik,  $E_0$  adalah medan listrik scaling,  $P_s$  adalah polarisasi saturasi, dan  $P$  adalah polarisasi yang terjadi.

Model Langevin dan Ising spin adalah model yang dibangun dengan anggapan bahwa dinding domain dalam pergerakannya (akibat penambahan atau pengurangan volume domain) tidak terhambat, reversibel, dan konservatif. Asumsi pada model Langevin adalah dipol listrik pada bahan orientasinya ke segala arah. Model

$$P_{an} = P_s \left[ \coth \left( \frac{E_e}{a} \right) - \frac{a}{E_e} \right] \quad (2)$$

$$P_{an} = P_s \tanh \left( \frac{E_e}{a} \right) \quad (3)$$

dengan  $a$  adalah parameter suhu bernilai  $a = \frac{E_0 T}{3 T_c}$  (pada model Langevin) atau  $a = \frac{E_0 T}{T_c}$  (pada model Ising spin),  $T$  adalah suhu bahan (K), dan  $T_c$  adalah suhu Curie.

Pada kenyataannya bahan ferroelektrik tidak homogen dan berongga, sehingga menyebabkan timbulnya *pinning site* / penghambat / penghalang. Adanya hambatan ini menghalangi pergerakan dinding domain dan menyebabkan

$$P_{irr} = P_{an} - k \frac{dP_{irr}}{dE \left( 1 + \alpha \frac{dP_{irr}}{dE} \right)} \quad (4)$$

dengan  $P_{irr}$  adalah polarisasi irreversibel.

domain ke domain lainnya secara kontinu tetapi curam. Karena itu dinding domain ferroelektrik lebih sempit daripada dinding domain pada bahan ferromagnetik yaitu berorde 1-10 nm, minimal 2-3 sel satuan kristal.

Dipol listrik dipengaruhi oleh dua medan listrik yaitu medan listrik eksternal ( $E$ ) dan medan listrik dari dipol-dipol tetangga. Pengaruh kedua medan listrik ini disebut dengan medan listrik efektif ( $E_e$ ) yang dinyatakan dengan relasi berikut.

Ising spin dibangun dengan asumsi bahwa dipol pada bahan hanya memiliki 2 orientasi yaitu satu dalam arah medan listrik eksternal dan lainnya berlawanan arah dengan medan listrik eksternal.

Polarisasi yang dihasilkan pada keadaan bebas histeresis (dinding domain dalam pergerakannya tidak terhambat) disebut polarisasi anhisteresis ( $P_{an}$ ). Relasi medan listrik yang diberikan pada bahan ( $E$ ) dengan polarisasi anhisteresis pada model Langevin dan Ising spin berturut-turut adalah sebagai berikut.

hilangnya energi / rugi histeresis (diberi simbol  $k$ , dengan harga  $k = \frac{n \langle \mathcal{E}_\pi \rangle}{2p}$ ,  $n$  adalah rapat *pinning* (rata-rata per satuan volume *pinning site*),  $\langle \mathcal{E}_\pi \rangle$  adalah rata-rata energi dinding 180<sup>0</sup>).

Energi polarisasi irreversibel adalah energi anhisteresis (tanpa keberadaan *pinning site*) dikurangi energi untuk mengatasi *pinning site*. Dari definisi tersebut didapat relasi berikut.

Persamaan(4) disusun ulang agar menjadi lebih sederhana menjadi

$$\frac{dP_{irr}}{dE} = \frac{\beta (P_{an} - P_{irr})}{\delta k - \alpha (P_{an} - P_{irr})} \quad (5)$$

Suseptibilitas listrik  $\frac{dP_{irr}}{dE}$ , secara fisis, tidak pernah teramati berharga negatif, sehingga persamaan (5)

ditambahkan konstanta  $\beta$ , agar  $\frac{dP_{irr}}{dE}$  dibuat

berharga nol pada kondisi tertentu, sehingga :

(i)  $\beta = 1$  bila  $dE > 0$  dan  $P_{an} > P$  ;  $\beta = 1$  bila  $dE < 0$  dan  $P_{an} < P$

(ii)  $\beta = 0$  bila  $dE > 0$  dan  $P_{an} < P$  ;  $\beta = 0$  bila  $dE < 0$  dan  $P_{an} > P$

$$P_{irr} = P_{irr} + \Delta E \frac{\beta(P_{an} - P_{irr})}{\delta k - \alpha (P_{an} - P_{irr})} \quad (6)$$

Adanya  $\delta$  untuk memastikan ruas kanan pada persamaan (4) selalu berlaku  $-k dP_{irr}$ , artinya energi untuk melintasi *pinning site* selalu melawan perubahan polarisasi, maka dibuat  $\delta$  berharga +1 bila  $dE$  positif dan berharga -1 bila  $dE$  negatif.

Persamaan diferensial (5) diselesaikan secara numerik yaitu

Komponen polarisasi reversibel terkait dengan selisih polarisasi anhisteresis (keadaan ideal, polarisasi yang terjadi seandainya tidak ada *pinning*

$$\begin{aligned} P_{rev} &= c_1 (P_{an} - P) \\ P_{rev} &= c (P_{an} - P_{irr}) \end{aligned} \quad (7)$$

dimana  $c = \frac{c_1}{1+c_1}$ . Parameter  $c$  adalah koefisien reversibilitas dari pergerakan dinding domain.. Penambahan volume domain sehingga dinding

$$P = P_{irr} + P_{rev} \quad (8)$$

Algoritma genetika digunakan untuk mendapatkan harga-harga parameter  $\alpha$ ,  $P_s$ ,  $a$ ,  $k$ , dan

## 2. METODE PENELITIAN

Studi simulasi kurva histeresis bahan ferroelektrik dilakukan dengan beberapa tahapan berikut ini :

$$fval = \frac{\sum_{i=1}^N (P_{model} - P_{exp})^2}{\sum_{i=1}^N (P_{exp} - P_{exp})^2} \quad (9)$$

$N$  adalah jumlah data.

$$r^2 = 1 - \frac{\sum_{i=1}^N (P_{model} - P_{exp})^2}{\sum_{i=1}^N (P_{exp} - P_{exp})^2} \quad (10)$$

Bila  $r^2$  mendekati satu berarti kualitas kurva model bagus, artinya kurva model mendekati kurva eksperimen.

*site*) dengan polarisasi total (ada *pinning site*) yang dinyatakan dengan persamaan berikut.

domain bergerak, menunjukkan efek reversibel, sebelum menunjukkan efek irreversibel. Polarisasi total adalah penjumlahan dari polarisasi irreversibel dan polarisasi reversibel

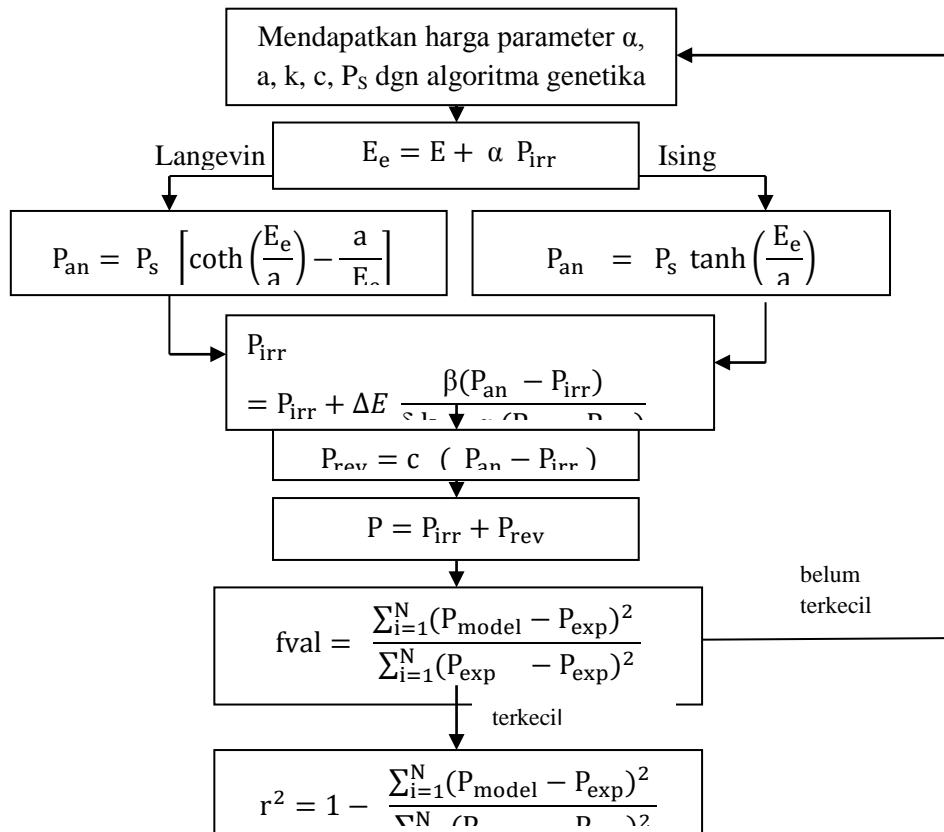
$c$  dengan mencari nilai terkecil dari *fitness value* yang ditetapkan.

2.1 Untuk membuat data eksperimen dari berbagai kurva histeresis digunakan software Engauge Digitizer Version 4.1 (c) 2002 oleh Mark Mitchell.

2.2 Fungsi kecocokan – *fitness function* (fitness value,  $fval$ ) yang digunakan adalah

Program juga akan menghitung nilai koefisien Pearson,  $r^2$ , yaitu

2.3 Membuat Program Utama Simulasi Kurva Histeresis dengan algoritma sebagaimana yang tampak pada gambar 1.



Gambar 1. Algoritma program simulasi.

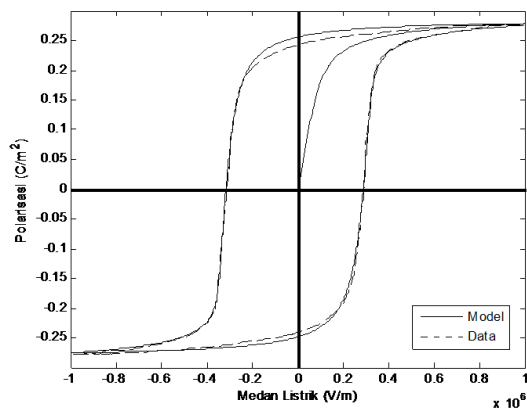
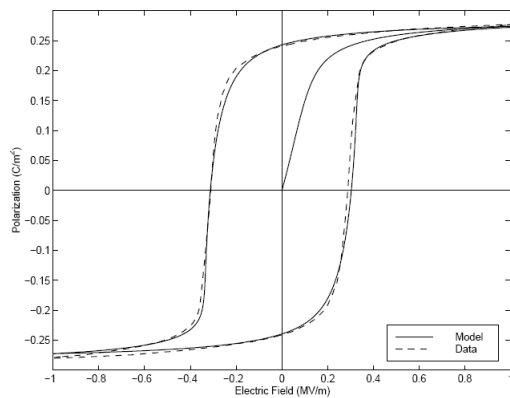
### 3. HASIL DAN PEMBAHASAN

Dari model yang ada kita bisa mengilustrasikan pengaruh parameter-parameter model dinding domain terhadap bentuk kurva. Bila parameter  $\alpha$  semakin besar maka kemiringan kurva semakin curam, polarisasi remanen meningkat. Bila parameter  $a$  semakin besar maka kemiringan kurva makin landai, polarisasi remanen menurun. Bila parameter  $k$  semakin besar, rugi histeresis semakin besar, kehilangan polarisasi irreversibel semakin besar, kurva histeresis semakin lebar, polarisasi remanen dan medan listrik koersif meningkat.

Bila parameter  $c$  semakin besar maka kurva histeresis makin sempit, polarisasi remanen dan medan listrik koersif makin kecil. Bila  $P_s$  semakin besar maka kurva histeresis semakin melebar pada arah vertikal, polarisasi remanen meningkat, medan listrik koersif tetap.

Program algoritma genetika dan program fungsi *fitness* – kecocokan divalidasi dengan kurva histeresis bahan PMN-PT-BT dari jurnal Ralph C Smith [2]. Kurva model dianggap bagus bila harga koefisien Pearson  $r^2$  mendekati satu, yang menunjukkan bahwa kurva model mendekati kurva eksperimen.

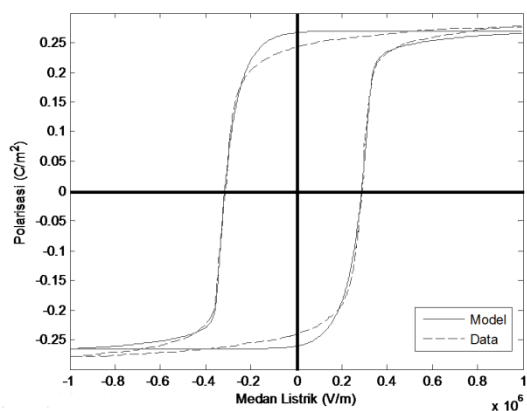
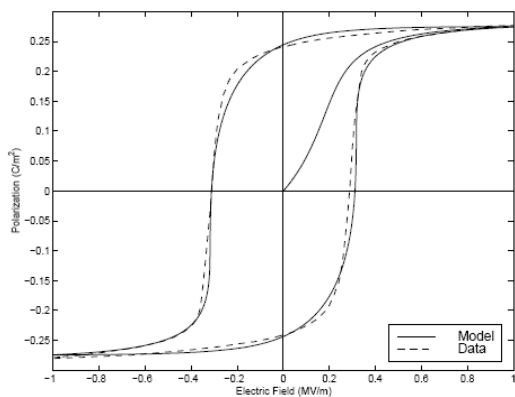
Perhatikan gambar 2 untuk model Langevin. Kurva sebelah kiri adalah kurva histeresis dari jurnal. Bila harga-harga parameter dari jurnal dimasukkan pada program simulasi maka koefisien Pearson untuk kurva jurnal adalah 0.9841. Sedangkan untuk kurva yang dihasilkan program simulasi (gambar 2 sebelah kanan) didapat koefisien Pearson 0.9988. Dengan demikian kurva histeresis hasil simulasi sama baiknya dengan kurva histeresis jurnal.



Gambar 2. Kurva histeresis model dan eksperimen bahan PMN-PT-BT model Langevin. Kurva sebelah kiri dari jurnal dan kurva sebelah kanan dari simulasi.

Perhatikan gambar 3 untuk model Ising spin. Kurva sebelah kiri adalah kurva histeresis dari jurnal. Bila harga-harga parameter dari jurnal dimasukkan pada program simulasi maka koefisien Pearson untuk kurva jurnal adalah 0.9752.

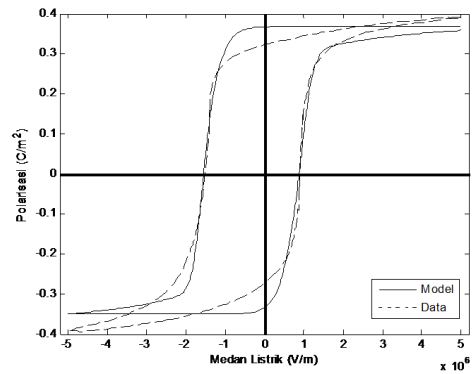
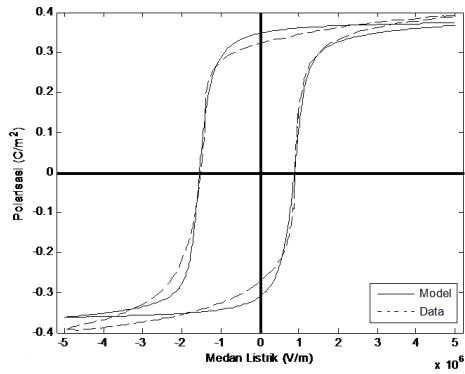
Sedangkan untuk kurva yang dihasilkan program simulasi (gambar 3 sebelah kanan) didapat koefisien Pearson 0.9968. Dengan demikian kurva histeresis hasil simulasi sama baiknya dengan kurva histeresis jurnal.



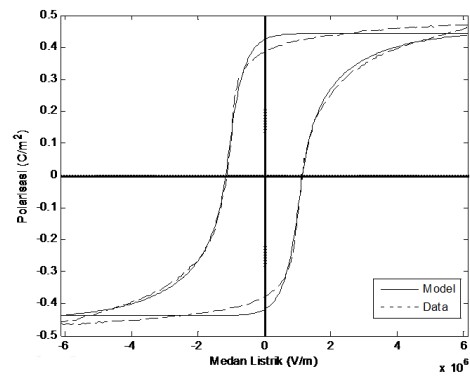
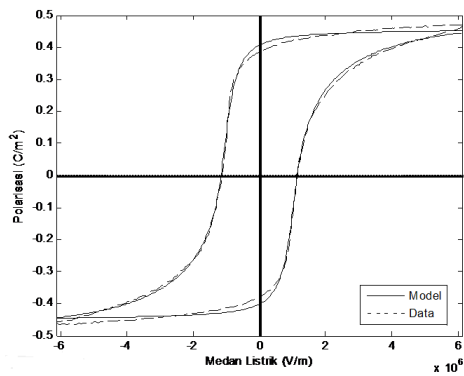
Gambar 3. Kurva histeresis model dan eksperimen bahan PMN-PT-BT model Ising spin. Kurva sebelah kiri dari jurnal dan kurva sebelah kanan dari simulasi.

Telah dilakukan studi simulasi kurva histeresis terhadap 8 jenis bahan ferroelektrik dengan hasil kurva histeresis model Langevin dan

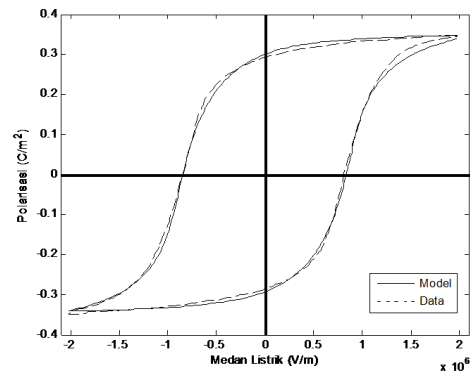
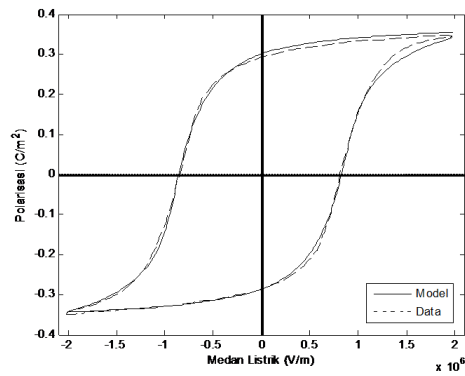
Ising spin sebagai berikut (gambar 4 sampai dengan gambar 11).



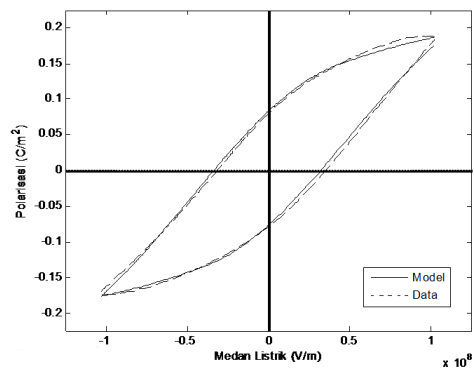
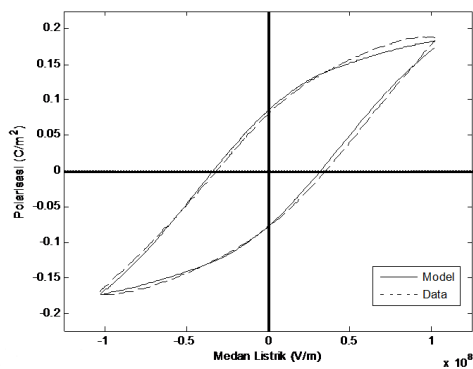
Gambar 4. Kurva histeresis bahan PZT4 [3] model Langevin (sebelah kiri) dan Ising spin (sebelah kanan)



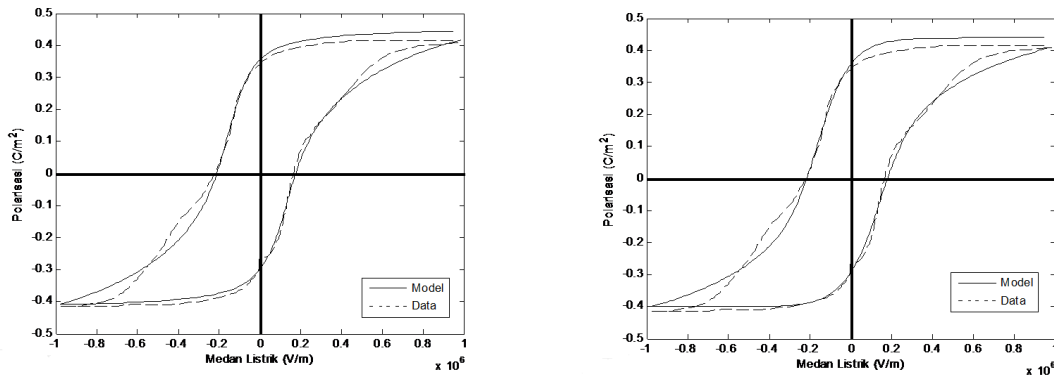
Gambar 5. Kurva histeresis bahan PZT5A [4] model Langevin (sebelah kiri) dan Ising spin (sebelah kanan)



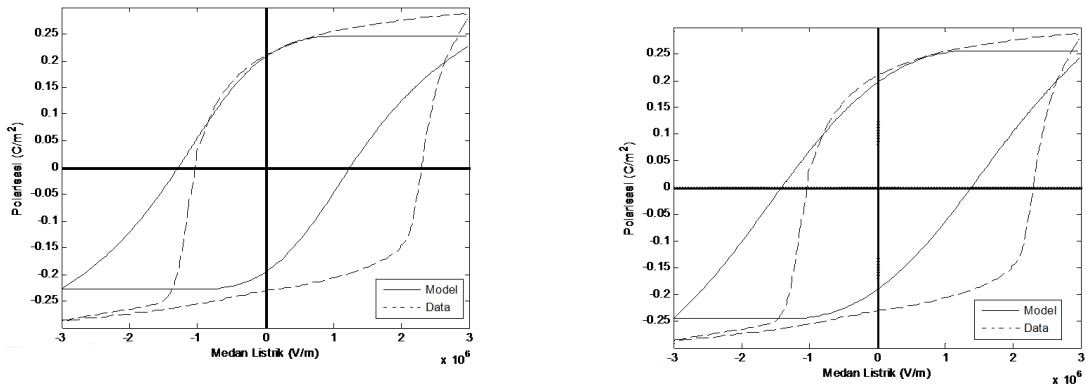
Gambar 6. Kurva histeresis bahan PZT5H [3] model Langevin (sebelah kiri) dan model Ising spin (sebelah kanan)



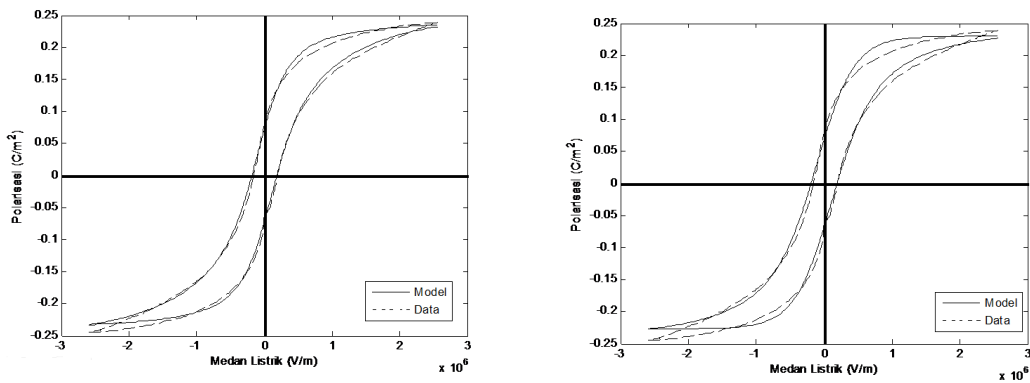
Gambar 7. Kurva histeresis bahan BT-BZ [5] model Langevin (sebelah kiri) dan Ising spin (sebelah kanan)



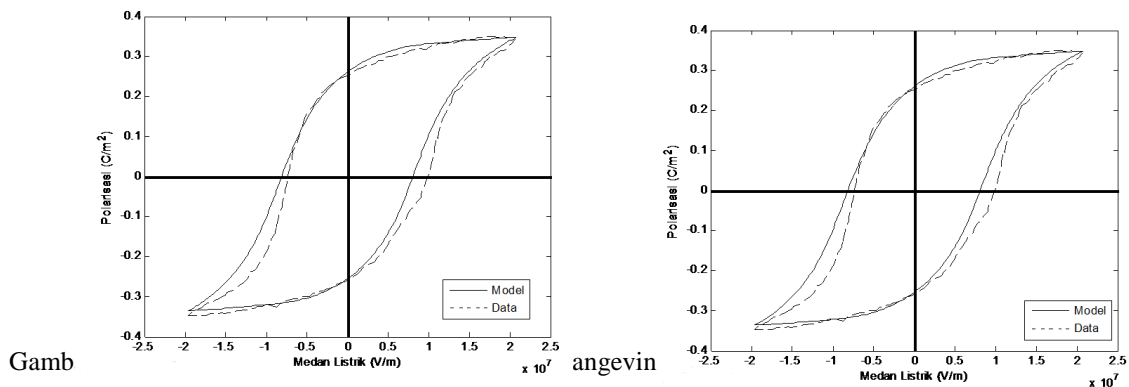
Gambar 8. Kurva histeresis bahan PMNT [6] model Langevin (sebelah kiri) dan Ising spin (sebelah kanan)



Gambar 9. Kurva histeresis bahan PZ26 [7] model Langevin (sebelah kiri) dan Ising spin (sebelah kanan)



Gambar 10. Kurva histeresis bahan BZT [8] model Langevin (sebelah kiri) dan Ising spin (sebelah kanan)



Gamb

angevin

Harga *fitness value* (fval), koefisien Pearson  $r^2$ , dan harga-harga parameter hasil simulasi dari kurva-kurva di atas dirangkum pada Tabel 1 (untuk model Langevin) dan Tabel 2 (untuk model Ising spin).

**Tabel 1.** Harga fval,  $r^2$ , parameter model, dari berbagai bahan ferroelektrik pada model Langevin.

No	Bahan	fval	$r^2$	Ps	k	$\alpha$	a	c
1	PZT4	0.0084	0.9915	0.3971	6101500	6414100	145880	0.8965
2	PZT5A	0.0012	0.9988	0.4824	2258900	2620800	226680	0.4820
3	PZT5H	0.0012	0.9988	0.4495	1283800	3258100	368650	0.5074
4	PMNT kristal tunggal	0.0054	0.9946	0.5469	746580	414350	57435	0.5130
5	BZT	0.0015	0.9985	0.2630	954580	450880	193310	0.7050
6	BT-BZ film tipis	0.0024	0.9976	0.3889	64915000	141780000	49969000	0.4278
7	PZT film tipis	0.0232	0.9768	0.5666	9595000	44925000	10595000	0.2564
8	PZ26	0.2844	0.7156	0.4102	1650600	1936400	607780	0.00001664

**Tabel 2.** Harga fval,  $r^2$ , parameter model, dari berbagai bahan ferroelektrik pada model Ising spin.

No	Bahan	fval	$r^2$	Ps	k	$\alpha$	a	c
1	PZT4	0.0129	0.9871	0.3913	6219100	6238300	464080	0.8376
2	PZT5A	0.0024	0.9976	0.4541	1989700	2390200	742060	0.3308
3	PZT5H	0.0016	0.9984	0.3887	1125100	3519600	1249800	0.3961
4	PMNT kristal tunggal	0.0068	0.9932	0.5132	755030	385300	176730	0.4804
5	BZT	0.0032	0.9968	0.2379	976750	329170	56481	0.6767
6	BT-BZ film tipis	0.0015	0.9985	0.3577	63067000	81195000	126880000	0.3454
7	PZT film tipis	0.0230	0.9770	0.4617	9445700	50092000	29025000	0.2585
8	PZ26	0.2728	0.7272	0.5026	1632400	3301200	3840300	0.0004269

Dari kedua tabel di atas, bahan PZT4, PZT5A, PZT5H, PMNT kristal tunggal, BZT, BT-BZ film tipis, PZT film tipis, baik bila digunakan model Langevin maupun Ising spin dengan  $r^2$  lebih besar dari 0.97. Bahan PZ26 kurang baik menggunakan model berbasis dinding domain, karena kurvanya tidak simetri. Bahan PMNT kristal tunggal memiliki nilai energi *pinning site* terendah bila dibandingkan dengan yang lainnya. Bahan PZT4 memiliki koefisien reversibilitas dari pergerakan domain tertinggi bila dibandingkan dengan yang lainnya.

#### 4. KESIMPULAN

Parameter-parameter model dinding domain memiliki pengaruh terhadap bentuk kurva. Program simulasi telah berhasil divalidasi dengan kurva histeresis bahan PMN-PT-BT (koefisien  $r^2$  lebih besar dari 0.99). Model Langevin maupun Ising spin baik digunakan untuk studi berbagai kurva histeresis berbagai bahan ferroelektrik dengan perolehan koefisien  $r^2$  lebih besar dari 0.97.

#### DAFTAR ACUAN

[1] D. Damjanovic, Hysteresis in piezoelectric and ferroelectric materials, *The Science of hysteresis*, Vol. 3, 337-565 (2005).

[2] Ralph C. Smith, Craig L. Home, A domain wall theory for ferroelectric hysteresis, *Journal of intelligent material systems and structures*, Vol. 10, 195-213 (1999).

[3] Ralph C. Smith, Binu Mukherjee, Shifang Liu, A homogenized energy model for hysteresis in ferroelectric materials : general density formulation, *Journal of intelligent material systems and structures*, Vol. 16, 713-732 (2005).

[4] Ralph C. Smith, Jordan E. Massad, A unified methodology for modeling hysteresis in ferroelectric, ferromagnetic and ferroelastic materials, *Proceedings of DETC'01 the ASME design engineering technical conference and*

computers and information in engineering conference, Vol. 6, Pt. B, 1389-1398 (2001).

[5] M. El Marssi, Y. Gagou, J. Belhadi, F. De Guerville, Yu. L. Yuzyuk, I.P. Raevski, Ferroelectric BaTiO<sub>3</sub>/BaZrO<sub>3</sub> superlattices : x-ray diffraction, Raman spectroscopy, and polarization hysteresis loops, Journal of applied physics, Vol. 108, 084104 (2010).

[6] Mickael Lallart (ed) , Ferroelectrics – applications, Croatia : InTech (2011).

[7] M. Stewart, M.G. Cain, D.A. Hall, Ferroelectric hysteresis measurement & analysis, United Kingdom : National Physical Laboratory (1999)

[8] F. Moura et al , Dielectric investigations of vanadium modified barium zirconium titanate ceramics obtained from mixed oxide method, Journal of Alloys and Compound 479, 280-283 (2009).