

令和 4 年 6 月 23 日現在

機関番号：34406

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2021

課題番号：17H03151

研究課題名(和文) デジタル複合構造により巨大電気磁気効果を発するマルチフェロイック材料の設計と創製

研究課題名(英文) Design and fabrication of multiferroic materials with huge magnetoelectric effect caused by digital composite structure

研究代表者

上辻 靖智 (Uetsuji, Yasutomo)

大阪工業大学・工学部・教授

研究者番号：00340604

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：次世代新規デバイス開発の核となるマルチフェロイック材料の電気磁気効果を飛躍的に向上することを目的とし、スケール連成に均質化理論、極値探索に最急降下法を採用した独自のマルチスケール最適設計法を構築し、数値解析主導の材料開発を実現した。代表的な強誘電体2種と強磁性体2種を採用し、電気磁気効果が最大となる最適化デジタル構造を探索した結果、4通りすべての材料組合せに対して、従来の均一配向積層構造を超える新しいデジタル構造を発見した。デジタル構造の創製に対して、圧粉・焼結法、スパッタ法と比較し、熱溶解積層方式の3Dプリンティングの有効性を確認したほか、最適化方法および構造体について特許出願した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究において、材料と結晶方位の不均質構造を積極的に活用し、巨大な電気磁気効果の発現に成功したことは世界初の成果である。特に、マルチフィジックス・マルチスケール最適設計法を独自に開発し、経験的知見に頼らない数値解析主導での材料開発、すなわちデジタル複合構造の有効性を明らかにしたことは画期的である。発見したデジタル複合構造においてせん断変形を伴う効率的なひずみ伝達によって巨大な電気磁気効果が生まれるメカニズムを解明しており、学術的意義は高い。さらに、3Dプリンティングへの展開も含め、デジタルものづくりの技術革新の一例として社会的意義も有する。

研究成果の概要(英文)：To dramatically improve the magnetoelectric effect of multiferroic materials, which are the core of the development of next-generation new devices, we constructed a multiscale optimal design method that adopted the homogenization theory for scale coupling and the steepest descent method for extreme value search, and realized material development led by numerical simulation. We searched for some optimized digital composite structures to maximize the magnetoelectric effect for typical ferroelectric and ferromagnetic materials. As a result, new digital composite structures that surpasses the conventional uniformly oriented laminate structure were discovered for all four material combinations. For the fabrication of digital structures, 3D printing by the fused deposition modeling has the effectiveness in comparison with the powder / sintering method and the sputtering method, and we applied for a patent on the optimization method and the discovered structures.

研究分野：機械材料・材料力学

キーワード：機械材料・材料力学 機能材料 マルチスケール解析 電気磁気効果

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 特定の酸化物 (BiFeO_3 , GdFeO_3 , TbMnO_3 等) において、磁界により電気応答、電界により磁気応答を制御できる電気磁気効果が発見され[1]、一部の研究はトムソン・ロイター引用栄誉賞を受賞するなど高い注目を集めている。このような物質は強弾性、強誘電性、強磁性を併せもつことからマルチフェロイック材料と呼ばれ、体外の磁界により体内で発電し駆動可能な医療用ナノモーター[2]など革新的な機械電子デバイスへの応用が期待されている。

(2) 今後、マルチフェロイック材料を応用して自動車から航空・宇宙、情報通信、医療に及ぶ幅広い分野で画期的なデバイス開発を実現するためには、電気磁気効果の向上が必要不可欠である。これに対し、これまで多結晶ランダム構造、多結晶積層構造、均一配向積層構造が考案され、飛躍的な特性向上が実現されているが不十分である。すなわち、これまでは経験的知見による材料開発が主であり、先進的数値解析を導入した挑戦的な設計は皆無であり、潜在的な性能を十分に発掘できていない。一方、マルチフェロイック材料に対して数値解析の事例[3]はあるが、実験値の再現に止まっているのが現状である。

2. 研究の目的

(1) 機能複合材料に対するマルチスケール最適設計法を独自に構築し、巨大電気磁気特性を有するこれまでにない新しいデジタル複合構造を発見する。また、最適化デジタル構造における巨大電気磁気効果の発現メカニズムを定量的に解明する。

(2) マルチスケール最適設計から得たデジタル複合構造に対して、圧粉・焼結法、スパッタ法、3D プリンティングによる創製を検討し、それぞれの創製法およびデジタル複合材料の有効性を明らかにする。

3. 研究の方法

(1) スケール連成に均質化法、不均質構造の多変数最適化に最急降下法を採用する。変位-電位-磁位連成問題のマルチスケール最適設計の定式化を行い、それに基づいた有限要素解析プログラムを独自に開発する。ミクロ構造モデルには規則分割メッシュを使用し、各要素にはミクロ構造の設計変数とする材料係数 (0 が強誘電体, 1 が強磁性体を表す実数)、結晶方位 (オイラー角により定義) を導入する。一方、目的関数にはマクロ構造の均質化された電気磁気効果定数を設定する。具体的には、磁界および電界の入出力方向が平行となる縦電気磁気定数 (a_{11} 成分) および直交する横電気磁気定数 (a_{31} 成分) を研究対象とする。

(2) 代表的な強誘電体として BaTiO_3 および PZT、強磁性体として CoFe_2O_4 および Terfenol-D を採用し、電気磁気効果が最大となる最適化デジタル構造を探索する。強誘電体相および強磁性体相の配置、含有率、電気・磁気分極方位を比較し、最適化デジタル構造に及ぼす材料組み合わせの影響を明らかにする。また、外部磁界を印加した場合のミクロ構造の応答を解析し、強磁性体相から強誘電体相へのひずみ伝達を定量化し、巨大電気磁気効果の発現メカニズムを解明する。

(3) マルチスケール最適設計により得たデジタル構造に対して、圧粉・焼結法、スパッタ法、3D プリンティングを適用し、創製の有効性を検証する。圧粉・焼結法では、湿式混合、圧粉成形、焼結、分極処理のプロセスを経てバルク材を創製する。スパッタ法では、RF マグネトロンスパッタ装置を用いて、シリコン基板上に金属下部電極バッファ層を形成した後、マルチフェロイック複合層を成膜する。3D プリンティングでは、熱溶解積層方式を採用し、機能セラミックス粒子が分散した高分子フィラメントを製作し、デジタル構造を成形する。

4. 研究成果

(1) スケール連成に漸近均質化理論を採用し、変位、電位、磁位の線形連成マルチフィジックス問題を定式化し、図 1 に示す 3 次元有限要素法に基づいた数値解析スキームを構築した[4]。マクロ構造において均質化した電気磁気定数を目的関数、ミクロ構造において各構成要素の分極方位と材料特性変数を設計変数として、電気磁気効果を最大化するデジタル複合構造を探索できる最適化システムとした。極値探索において局所解に停留した場合、ミクロ構造における設計変数のクリーニング、すなわち分極方位と相変数の単純化を実施した。分極方位に関しては、(001) 極点図において隣接する方位群をグループ化し、グループ毎に方位の平均値を算出し、同一グループに属する相のすべての方位を平均値に更新した。一方、配置に関しては、要素内の積分点に設定された相変数を強誘電体相または強磁性体相に 2 値化する機能も備えた。

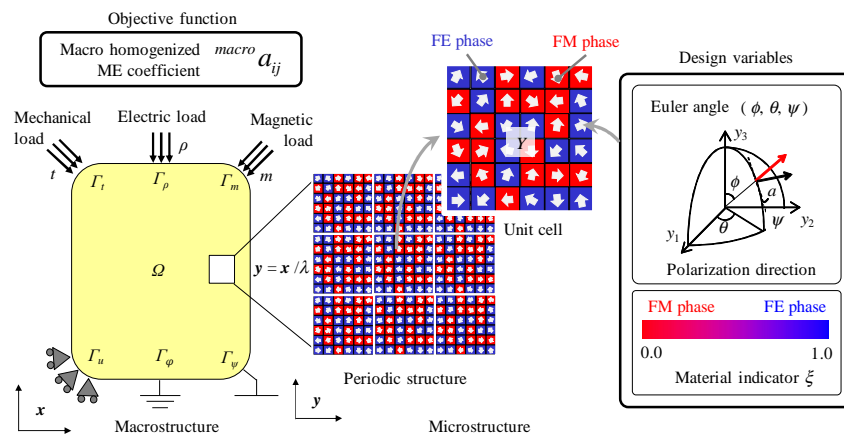


図1 電気磁気複合材料のマルチスケール最適設計法

(2) 代表的な強誘電体として $BaTiO_3$ および PZT, 強磁性体として $CoFe_2O_4$ および Terfenol-D を採用し, 電気磁気効果が最大となる最適化デジタル構造を探索した結果, すべての材料組合せに対して, 従来の均一配向積層構造を超える新しいデジタル構造を発見した. 一例として, 縦電気磁気定数を目的関数とした場合の最適結果を従来の均一配向積層構造と比較して図2に示す[5].

Material combination		Optimized microstructure				Multilayered structure		Increase rate of ME coefficient Δa_{11} [%]
FE phase	FM phase	Phase configuration	Pole figures of polarization direction	Connectivity FE content [%]	ME coefficient a_{11} [mNs/Vc]	Connectivity FE content [%]	ME coefficient a_{11} [mNs/Vc]	
PZT	CFO			1-1 60.0	-54.8	2-2 37.5	-44.1	+24.3
	TFD			0-0 50.0	-94.9	2-2 37.5	-94.0	+0.96
BTO	CFO			0-0 50.0	-71.2	2-2 50.0	-58.9	+21.2
	TFD			1-1 50.0	-123.7	2-2 50.0	-122.7	+0.79

図2 マルチスケール最適化より得たデジタル複合構造と均一配向積層構造の比較

(3) マルチスケール最適設計により得たデジタル構造の創製においては, 圧粉・焼結法, スパッタ法と比較し, 熱溶解積層方式の3Dプリンティングが最も有効であった. 強固な界面を形成するため粒子表面にシランカップリング剤をコーティングし, 機能セラミックス粒子分散高分子フィラメントを製作した. 金型を用いてディスク状試験片を製作し, 成形性および圧電性に及ぼす効果を調査した結果, シランカップリング剤の添加量は1.0wt%が最適であることを見出した. また, チタン酸バリウム粒子とポリプロピレンにより製作したフィラメントを用いて, 最適構造ではないがディスク状試験片を試作した. 一例として, 図3に示すように等価な圧電特性を評価した結果, 粒子含有量が0.74vol%で0.14pC/N, 1.47vol%で0.71 pC/Nの圧電性の計測に成功した.

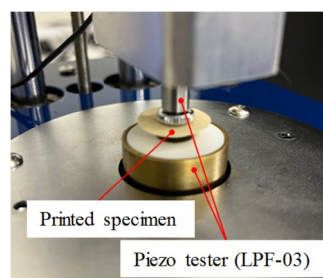


図3 ディスク状プリント試験片の圧電特性試験

< 引用文献 >

[1] T. Kimura et al., *Letter to nature*, **426**, 55-58, 2003.
 [2] G.P. Carman et al. *Science Newton and Nano Facilities*, 2013.
 [3] K.P. Jayachandran et al. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures*, **25**, 1243-125, 2013.
 [4] Y. Uetsuji, T. Wada, *Computational Materials Science*, **172**, 2020, 109365
 [5] F. Sano, Y. Uetsuji, *Composite Structures*, **290**, 2022, 115500

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Fumiya Sano, Yasutomo Uetsuji	4. 巻 290
2. 論文標題 Multiscale optimization of magnetoelectric composite materials - Effect of material combination	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Composite Structures	6. 最初と最後の頁 115500
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.compstruct.2022.115500	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yasutomo Uetsuji, Takeshi Wada, Kazuyoshi Tsuchiya	4. 巻 158
2. 論文標題 Multiscale numerical study on origin of magnetoelectric effect in view of localization of microstructural strain field for multiferroic composite materials	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Computational Materials Science	6. 最初と最後の頁 159-169
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.commat.2018.11.017	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 福井翔大, 上辻靖智	4. 巻 68
2. 論文標題 マルチフェロイック複合材料の微視構造と材料組合せに関するマルチスケール数値解析研究	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 材料	6. 最初と最後の頁 697-703
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yasutomo Uetsuji, Takeshi Wada	4. 巻 172
2. 論文標題 Computational study on microstructural optimization of magnetoelectric composite materials	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Computational Materials Science	6. 最初と最後の頁 109365
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.commat.2019.109365	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yasutomo Uetsuji, Takeshi Wada, Yasuyuki Uekita, Jiro Terada, Kazuyoshi Tsuchiya	4. 巻 228
2. 論文標題 Computational and experimental investigation of the crystal orientation control effect on the electric permittivity and magnetic permeability of multiferroic composite materials	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Acta Mechanica	6. 最初と最後の頁 2879-2893
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s00707-015-1526-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yasutomo Uetsuji, Takeshi Wada, Kazuyoshi Tsuchiya	4. 巻 230
2. 論文標題 Statistical investigation of homogenized physical properties of polycrystalline multiferroic composites materials	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Acta Mechanica	6. 最初と最後の頁 1387-1401
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s00707-017-2018-x	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計29件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 13件)

1. 発表者名 Fumiya Sano, Yasutomo Uetsuji
2. 発表標題 Microrstructural optimization of magnetoelectric ceramic composites
3. 学会等名 International Conference on Functional Material Applications 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐野史弥、上辻靖智
2. 発表標題 電気磁気複合材料のマルチスケール最適設計に及ぼす材料組み合わせの影響
3. 学会等名 日本材料学会 第13回日本複合材料会議 (JCCM-13)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山本夏海、井出康太、青木憲治、上辻靖智
2. 発表標題 3Dプリント圧電粒子分散高分子複合材料の機能特性評価
3. 学会等名 日本材料学会 第13回日本複合材料会議 (JCCM-13)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山本夏海, 上辻靖智
2. 発表標題 3Dプリント圧電セラミック粒子分散高分子複合材料のマルチスケールシミュレーション
3. 学会等名 日本機械学会2021年度年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐野史弥, 上辻靖智
2. 発表標題 マルチスケール解析による電気磁気セラミック複合材料のマイクロ構造設計
3. 学会等名 日本機械学会2021年度年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Fumiya Sano, Yasutomo Uetsuji
2. 発表標題 Multiscale optimization of multiferroic composite materials
3. 学会等名 The 7th Asian Conference on Mechanics of Functional Materials and Structures (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Natsumi Yamamoto , Yasutomo Uetsuji
2. 発表標題 Multiscale Simulation of 3D-printed Piezoelectric Composite Structure
3. 学会等名 International Conference on Functional Material Applications 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Kenya Ashida , Yasutomo Uetsuji
2. 発表標題 A Proposal of Material Design Procedure for Laminated Magnetolectric Laminated Composites
3. 学会等名 International Conference on Functional Material Applications 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Fumiya Sano, Yasutomo Uetsuji
2. 発表標題 Multiscale Optimizaition of Magnetolectric Composite Materials
3. 学会等名 International Conference on Functional Material Applications 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山本夏海, 上辻靖智
2. 発表標題 3Dプリンタを用いた圧電複合構造のマルチスケール解析
3. 学会等名 日本機械学会関西学生会2020年度学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 芦田賢哉, 上辻靖智
2. 発表標題 積層型複合材料の電気磁気特性設計法の提案
3. 学会等名 日本材料学会 材料シンポジウム 若手学生研究発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐野史弥, 上辻靖智
2. 発表標題 電気磁気複合材料のミクロ構造最適設計
3. 学会等名 日本材料学会 材料シンポジウム 若手学生研究発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐野史弥, 上辻靖智
2. 発表標題 3Dプリント圧電粒子分散高分子複合材料のマルチスケール解析
3. 学会等名 日本機械学会2020年度年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yasutomo Uetsuji
2. 発表標題 Multiscale numerical study on functional materials
3. 学会等名 Global Summit on Material Science & Enginnering (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 多川真登, 若林裕樹, 上辻靖智
2. 発表標題 残留応力による圧電薄膜の高性能化に関する数値解析
3. 学会等名 日本機械学会2019年度年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 福井翔大, 上辻靖智
2. 発表標題 マルチフェロイック複合材料の電気磁気効果に関する数値解析
3. 学会等名 日本機械学会2019年度年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 芦田賢哉, 福井翔大, 上辻靖智
2. 発表標題 マルチフェロイック高分子複合材料のマルチスケール解析
3. 学会等名 日本機械学会2019年度年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 芦田賢哉, 福井翔大, 上辻靖智
2. 発表標題 マルチスケール解析による高分子基複合材料の電気磁気特性評価
3. 学会等名 日本機械学会 M&M2019材料力学カンファレンス
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yasutomo Uetsuji, Takeshi Wada
2. 発表標題 Multiscale numerical study on origin of magnetoelectric effect
3. 学会等名 6th European Conference on Computational Mechanics (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yasutomo Uetsuji, Takeshi Wada
2. 発表標題 Multiscale study on origin of magnetoelectric effect in multiferroic composite materials
3. 学会等名 13th World Congress on Computational Mechanics (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Syota Fukui, Yasutomo Uetsuji
2. 発表標題 Multiscale simulation of multiferroic composite materials
3. 学会等名 International Symposium on Functionally Graded Materials (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hiroyuki Wakabayashi, Yasutomo Uetsuji
2. 発表標題 Enhancement effect of residual stress on piezoelectric response of laminated structures
3. 学会等名 6th Asian Conference on Mechanics of Functional Materials and Structures (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Shota Fukui, Yasutomo Uetsuji
2. 発表標題 Multiscale numerical study on microstructure and material combination for multiferroic composite materials
3. 学会等名 6th Asian Conference on Mechanics of Functional Materials and Structures (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 福井翔大, 上辻靖智
2. 発表標題 マルチフェロイック複合材料のミクロ構造と材料組合せに関するマルチスケール解析
3. 学会等名 日本機械学会 M&M2018材料力学カンファレンス
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 若林裕樹, 上辻靖智
2. 発表標題 残留応力による薄膜積層構造の圧電応答の増幅効果に関する数値解析
3. 学会等名 日本機械学会 M&M2018材料力学カンファレンス
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hiroki Wakabayashi, Yasutomo Uetsuji
2. 発表標題 Multiscale numerical study on ferroelectric nonlinear response of PZT thin films
3. 学会等名 SPIE Micro Technologies 2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Masahiro Minamiyama, Yasutomo Uetsuji
2. 発表標題 First-principles study on adhesive strength between metal layer and silane coupling agents
3. 学会等名 The 8th International Conference on Computational Methods (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 上辻靖智, 和田 剛
2. 発表標題 マルチフェロイック複合材料の電気磁気効果の発現メカニズムに関するマルチスケール数値解析
3. 学会等名 第28回新構造・機能制御と傾斜機能材料シンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 福井翔大, 上辻靖智
2. 発表標題 マルチフェロイック複合材料のマルチスケールシミュレーション
3. 学会等名 日本機械学会関西学生会平成29年度学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計2件

産業財産権の名称 マルチフェロイック材料の微視構造の最適化方法、およびマルチフェロイック材料構造体	発明者 上辻靖智, 和田 剛, 佐野史弥	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2021-145738	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 マルチフェロイック材料の微視構造の最適化方法、およびマルチフェロイック材料構造体	発明者 上辻靖智, 和田 剛	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2020-151390	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------