

令和 5 年 6 月 26 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2021～2022

課題番号：21K18673

研究課題名（和文）多孔質メタマテリアルによるトポロジカル強誘電性の創出とその力学-幾何学的機能制御

研究課題名（英文）Creation and Mechanical-Structural Control of Topological Ferroelectrics by Porous Metamaterials

研究代表者

嶋田 隆広（Shimada, Takahiro）

京都大学・工学研究科・教授

研究者番号：20534259

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、強誘電体の多孔質メタマテリアルに着目し、第一原理計算ならびにフェーズフィールド法を用いた数値計算によってその微視的強誘電分極と外場応答特性を評価した。その結果、均質材中の直線状の分極とは全く異なる多重渦やらせん状などの位相幾何学的（トポロジカル）な新奇分極がナノ多孔質メタマテリアル中に発現することを明らかにした。また、電場に対するヒステリシス応答特性がその微視的構造に強く依存することを明らかにし、構造設計できることを示した。さらに、磁性体の多孔質メタマテリアル、強誘電体と磁性体の複合メタマテリアルについても評価を行い、その機能が微視的構造に強く依存することを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、多孔質メタマテリアルの微視的内部構造とひずみ分布によって位相幾何学的な強誘電性を創り出すことで、材料力学的観点に基づく全く新しい機能創成の可能性を開拓する点に学術的意義がある。特に、メタマテリアルは光学・音響分野にて主たる研究対象となっているが、本研究では電気-力学的機能を主とするトポロジカル強誘電性のメタマテリアルなる新たな概念を立ち上げる点に特徴がある。本成果により、均質材では達成し得なかったヒステリシス応答や巨大な圧電効果などの新規機能を付与することができ、ナノ機械デバイスや情報デバイスの超大容量化といった産業応用への寄与の観点で社会的意義がある。

研究成果の概要（英文）：In this study, I focus on ferroelectric porous metamaterials and evaluate their microscopic ferroelectric polarization and external field response by first-principles calculations and phase-field method. We found that novel topological polarizations such as multiple vortices and spirals, which are completely different from linear polarizations in homogeneous materials, appear in the nanoporous metamaterials. We also found that the hysteresis response to electric field strongly depends on the microscopic structure of the nanoporous metamaterials, and showed that it can be designed by the microstructure of the nanoporous metamaterials. Furthermore, we have also evaluated porous metamaterials of magnetic materials and composite metamaterials of ferroelectrics and magnetic materials, and found that their functions strongly depend on their microstructures.

研究分野：計算材料力学

キーワード：多孔質メタマテリアル 複合物理特性 ナノ強誘電体 Phase-Field法 第一原理計算

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19（共通）

### 1. 研究開始当初の背景

強誘電（圧電）材料は、力場・電場と緊密に作用する性質（圧電応答やヒステリシス応答）を有することから次世代ナノ・電気機械・エネルギー科学技術の基幹材料となっており、その実現のためナノレベルの単一要素に多様かつより高度な機能を付与することが求められている。研究代表者は、ナノスケール材料の強誘電性を原子/電子レベルから解明する研究に従事し、ナノ要素の低次元形状（薄膜やワイヤ等）によって特殊な強誘電分極や機能が発現することを明らかにしてきた。一方、ナノポーラス（多孔質）材やメタマテリアルは、内部に階層的なナノスケールの多孔微視構造を有することが特徴であり、複雑な形状のナノ要素が密接に配列・連結した構造と捉えることができる。研究代表者は上述の研究過程で、ナノ要素間には強い強誘電相互作用が存在することに気づき、ナノ要素の密接かつ周期的な配列・連結により構成される多孔質メタマテリアルでは、均質材とは全く異なる強誘電特性が現れることを発見した。例えば、強誘電分極が多数のナノ渦から成る「多重渦」状などの位相幾何学的（トポロジカル）な新奇分極が多孔質メタマテリアル中に発現することを発見している。これは、均質材で見られる直線的かつ均一な分極と全く異なるものであり、この発現に伴って新しい機能が現れることが期待される。さらに、ひずみ負荷による強誘電特性の連動効果（マルチフィジックス）に関する研究代表者の研究成果を応用すれば、この新奇な強誘電特性を力学的に制御し、従来以上に引き出すことが可能である。

以上の研究過程から、ナノ多孔質メタマテリアル構造によって、通常存在し得ない多重渦型などの位相幾何学的な強誘電分極や多重ヒステリシス応答などの新奇特性・機能を創出できると、負荷ひずみによってその新機能を力学的に制御・設計できること、に思い至った。

### 2. 研究の目的

本研究では、多孔質メタマテリアル中の特異な強誘電分極と、同時に発現する新しい電気機械応答機能を解明し、新たな学術研究分野トポロジカル強誘電性の創出を目指す。さらに、負荷ひずみと新奇分極の連動作用（マルチフィジックス）を究明することで、新機能を自在に発現・制御するための設計基盤を構築する。

### 3. 研究の方法

並列計算クラスターに量子力学に基づく第一原理解析プログラム、ならびに、独自のフェーズフィールド法プログラムを実装し、これらによってナノスケールの多孔質（ポーラス）メタマテリアル材・ナノ複合材料中の分極秩序を解析し、その応答機能性を数値計算モデルによって明らかにする。

### 4. 研究成果

機能性材料の代表として強誘電体の多孔質メタマテリアルを対象に、その微視的構造のモデリングを行った。図1左に示すように、構造体を物質と空孔の2種類のグリッド要素に分割し、要素に強誘電体もしくは真空条件を適用することで、様々な形状を有する多孔質メタマテリアルをモデル化した。このように系統的にモデリングした強誘電体多孔質メタマテリアルに対し、電場印加シミュレーションを行い、電場-分極のヒステリシス応答特性を評価した。図1右に示すように、電気的ヒステリシス応答特性は、多孔質メタマテリアルの微視構造  $n$  に強く依存することが明らかになった。図中からわかるとおり、残留分極値の大きさや、スイッチングに必要な抗電場の値、エネルギー効率を示すヒステリシスループの面積など、電気応答を特徴づける様々な要素が微視構造に依存することが明らかになった。同時に、本結果に基づいて電場応答に関する特定の性質や機能を最適化するための構造設計指針を提案した。

さらに、本強誘電体多孔質メタマテリアルの電気機械応答特性を明らかにするため、圧電応答特性を評価した。図2に示すように、圧電応答特性についても、微視構造  $n$  に強く依存することが明らかになった。微視構造に応じて、均質な系の圧電応答特性の5倍ほど大きな応答を取り出せることを明らかにするとともに、一方では圧電応答特性を抑えることもできることを示した。すなわち、メタマテリアルの微視構造を設計することで、本来物質が持っている圧電応答特性を拡大することや逆に低減することが可能であり、所望の箇所に所望の圧電応答特性を意図的に付与できることを示した。

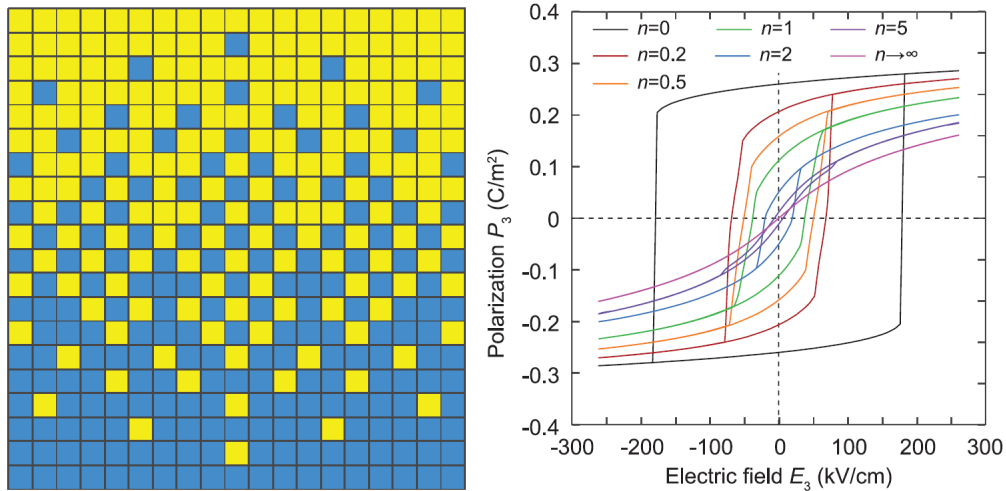


図 1. 強誘電体の多孔質メタマテリアルの構造モデリングの模式図と電場-分極ヒステリシス応答特性のメタ構造依存性.

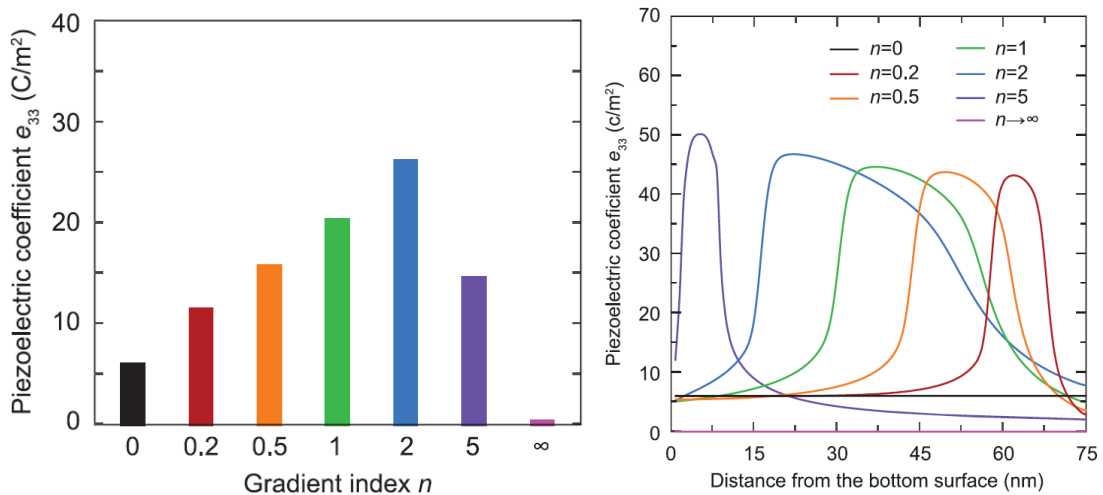


図 2. 強誘電体の多孔質メタマテリアルの圧電応答特性のメタ構造依存性.

機能性材料のもう 1 つの代表として磁性体の多孔質メタマテリアルを対象に、その微視的構造のモデリングと物性評価解析を行った。微視構造の代表として、近年新物性の発生が報告されている Gyroid 構造についての結果を示す。図 3 は、Gyroid 構造を有する磁性体多孔質メタマテリアルの磁気モーメント構造解析結果を示す。Gyroid 構造では、構造体の分枝が分岐点を起点に分岐・合流を繰り返す特徴的な構造を有している。磁気モーメント分布についても、こうした分岐点を起点に合流と分岐を繰り返しており、Gyroid 構造中に、渦 (vortex)、反渦 (anti-vortex)、右手系・左手系らせん (right-handed, left-handed spiral) などの様々な位相幾何学 (トポロジカル) な磁気モーメント秩序を形成することが明らかになった。これは、多孔質メタマテリアルの幾何学的構造と磁気モーメントの幾何学的秩序が互いに相関していることを示しており、この構造-機能相関によって、単純な強磁性秩序のみの均質材では達成できなかった多様な磁気モーメント秩序を意図的に設計できることを明らかにした。

さらに、本磁性体の多孔質メタマテリアルの磁場応答特性を明らかにするため、有限磁場印加解析を行った。図 4 に示すように、磁場-磁気モーメントのヒステリシス応答特性は、多孔質メタマテリアルの微視構造に強く依存しており、残留磁気モーメントの大きさや、磁気反転に必要な抗磁場の値、エネルギー効率を示すヒステリシスループの面積など、磁場応答を特徴づける様々な要素が微視構造によって大きく変化することが明らかになった。こうした応答特性の違いは、微視的な構造に依存する磁気モーメント秩序の違いによって反転に必要な磁場が異なることや、磁気モーメントの磁場応答のプロセスが異なることに起因している。すなわち、メタマテリアルの微視構造を設計することで、磁場応答特性を構造的に設計できることを示した。

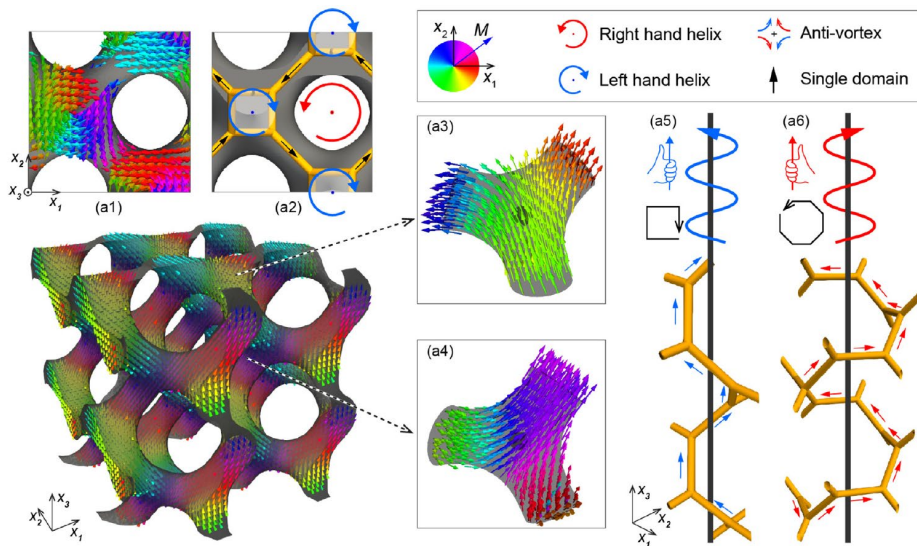


図 3. 磁性体の多孔質メタマテリアルの磁気モーメント分布とその幾何学的性質.

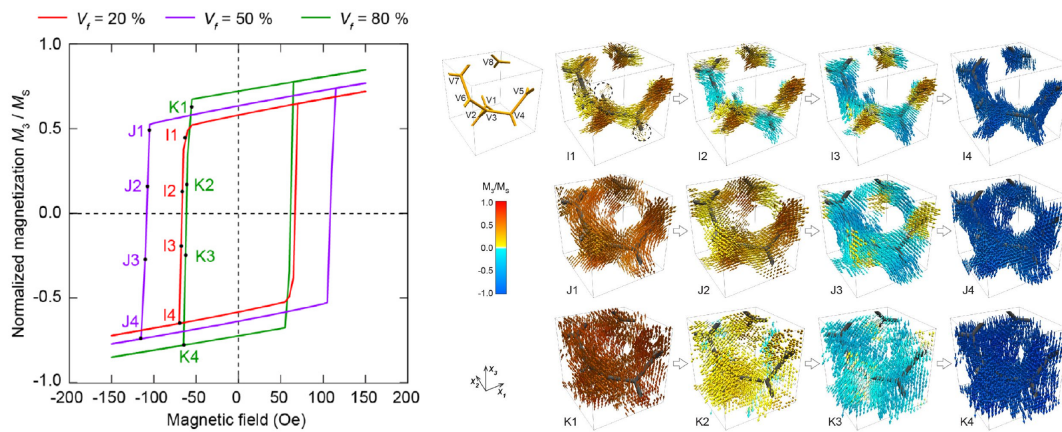


図 4. 磁性体の多孔質メタマテリアルの磁場-磁気モーメントのヒステリシス応答特性とその微視的スイッチング機構.

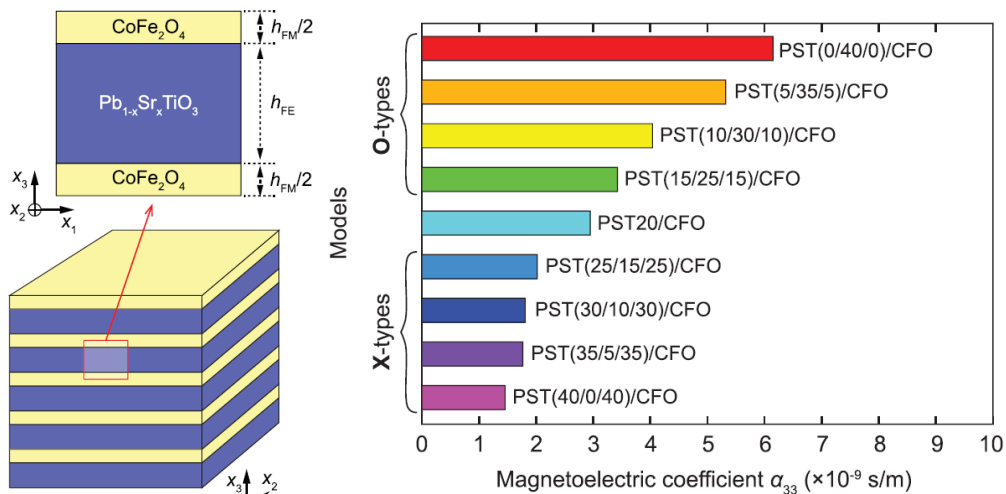


図 5. 強誘電体と磁性体の複合メタマテリアルの構造モデリングとその電気磁気結合係数解析結果.

さらに、上記の強誘電体と磁性体の高度の機能を融合し、電場と磁場両方に対して応答する多機能性を創出するため、強誘電体と磁性体の複合メタマテリアルについての解析を行った。図5に示すように、強誘電体と磁性体の体積比や形状を様々に変え、その電気磁気結合係数 (Magnetoelectric coupling coefficient) を解析した。その結果、電気磁気結合係数は、複合メタマテリアルの微視構造に強く依存することが明らかになった。複合の比率と微視構造を設計することで、巨大な電気磁気結合係数を実現できることも明らかとなり、力場・電場・磁場の全てに対して敏感に応答する複合メタマテリアルを構造設計する指針を示した。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 11件／うち国際共著 9件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Lich Le Van, Hue Dang Thi Hong, Giang Do Thi Huong, Duc Nguyen Huu, Shimada Takahiro, Kitamura Takayuki, Dinh Van-Hai	4. 巻 249
2. 論文標題 Formation and switching of chiral magnetic field textures in three-dimensional gyroid nanostructures	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Acta Materialia	6. 最初と最後の頁 118802 ~ 118802
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.actamat.2023.118802	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 該当する
1. 著者名 Wang Yu, Wang Jie, Kitamura Takayuki, Hirakata Hiroyuki, Shimada Takahiro	4. 巻 18
2. 論文標題 Exponential Temperature Effects on Skyrmion-Skyrmion Interaction	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 044024 ~ 044024
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/physrevapplied.18.044024	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 該当する
1. 著者名 Wang Yu, Kitamura Takayuki, Wang Jie, Hirakata Hiroyuki, Shimada Takahiro	4. 巻 18
2. 論文標題 Mechanical Acceleration and Control of the Thermal Motion of a Magnetic Skyrmion	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 014049-014049
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/physrevapplied.18.014049	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 該当する
1. 著者名 Wang Yu, Wang Jie, Kitamura Takayuki, Hirakata Hiroyuki, Shimada Takahiro	4. 巻 106
2. 論文標題 Effective modeling of magnitude-fluctuated magnetization dynamics: Dynamic precursor effect in magnets	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 094423 ~ 094423
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/physrevb.106.094423	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 該当する

1. 著者名 Van Lich Le, Hou Xu, Phan Manh-Huong, Quoc Bui Tinh, Wang Jie, Shimada Takahiro, Kitamura Takayuki, Dinh Van-Hai	4. 巻 54
2. 論文標題 Electrocaloric effect enhancement in compositionally graded ferroelectric thin films driven by a needle-to-vortex domain structure transition	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Physics D: Applied Physics	6. 最初と最後の頁 255307 ~ 255307
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6463/abf0ed	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 該当する

1. 著者名 Masuda Kairi, Shimada Takahiro, Kitamura Takayuki	4. 巻 104
2. 論文標題 Ferroelectric nanoscale logic gates by mixed dislocations in SrTiO3	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 054104-054104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/physrevb.104.054104	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 Wang Yu, Shimada Takahiro, Wang Jie, Kitamura Takayuki, Hirakata Hiroyuki	4. 巻 221
2. 論文標題 The rectilinear motion of the individual asymmetrical skyrmion driven by temperature gradients	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Acta Materialia	6. 最初と最後の頁 117383 ~ 117383
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.actamat.2021.117383	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 該当する

1. 著者名 Zhu Yuquan, Xu Tao, Wei Qinghua, Mai Jiawei, Yang Hongxin, Zhang Huiran, Shimada Takahiro, Kitamura Takayuki, Zhang Tong-Yi	4. 巻 7
2. 論文標題 Linear-superelastic Ti-Nb nanocomposite alloys with ultralow modulus via high-throughput phase-field design and machine learning	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 npj Computational Materials	6. 最初と最後の頁 205-205
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41524-021-00674-7	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 該当する

1. 著者名 Shimada Takahiro, Wang Yu, Hamaguchi Takayuki, Kasai Kohta, Masuda Kairi, Van Lich Le, Xu Tao, Wang Jie, Hirakata Hiroyuki	4. 巻 33
2. 論文標題 Emergence of non-trivial polar topologies hidden in singular stress field in SrTiO <sub>3</sub> : topological strain-field engineering	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 505301 ~ 505301
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648x/ac28c1	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 該当する

1. 著者名 Lich Le Van, Bui Tinh Quoc, Shimada Takahiro, Kitamura Takayuki, Hong Hue Dang Thi, Nguyen Trong Giang, Dinh Van Hai	4. 巻 5
2. 論文標題 Abnormal Electromechanical Property of Nonlinearly Graded Lead Free Ferroelectric Thin Films	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Advanced Theory and Simulations	6. 最初と最後の頁 2100370 ~ 2100370
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adts.202100370	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 該当する

1. 著者名 Hirakata Hiroyuki, Fukuda Yasuyuki, Shimada Takahiro	4. 巻 55
2. 論文標題 Flexoelectric properties of multilayer two-dimensional material MoS <sub>2</sub>	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Physics D: Applied Physics	6. 最初と最後の頁 125302 ~ 125302
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6463/ac4367	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13件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 Yu Wang
2. 発表標題 Temperature Dependence of the Magnetic Skyrmion-Skyrmion Interaction: A Phase-Field Study
3. 学会等名 ICMR2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年



1. 発表者名 Kohta Kasai
2. 発表標題 Phase-field Simulation of Mechanically Induced Polar Skyrmions in PbTiO <sub>3</sub> Ultrathin Films
3. 学会等名 ICMR2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 笠井恒汰
2. 発表標題 強誘電体ナノ薄膜への押し込みによる分極スキルミオン組織形成に関するPhase-field解析
3. 学会等名 第35回計算力学講演会 (CMD2022)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 笠井恒汰
2. 発表標題 強誘電スキルミオンのナノメカニカルライティング
3. 学会等名 第2回マルチスケールマテリアルモデリングシンポジウム (第7回マルチスケール材料力学シンポジウム)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 阿部能將
2. 発表標題 鉄単結晶におけるひずみ誘起磁気相転移の電子的制御に関する第一原理解析
3. 学会等名 第2回マルチスケールマテリアルモデリングシンポジウム (第7回マルチスケール材料力学シンポジウム)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 嶋田 隆広
2. 発表標題 電子ドーピングによる結晶の弾性特性変化に関する第一原理解析
3. 学会等名 第35回計算力学講演会 (CMD2022)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 嶋田 隆広
2. 発表標題 材料強度の電子的制御とその量子論的力学機構
3. 学会等名 粉体粉末冶金協会2022年度春季大会 (第129回講演大会) (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 笠井恒汰, 濱口高征, 嶋田隆広, 平方寛之
2. 発表標題 特異応力場による強誘電体内の高次トポロジカル秩序群の創出
3. 学会等名 第6回マルチスケール材料力学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 嶋田隆広, 市木佑樹, 平方寛之
2. 発表標題 SrTiO <sub>3</sub> 表面の電子Polaronによる強誘電Skyrmionの創出とその力学的制御
3. 学会等名 M&M2021材料力学カンファレンス
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 笠井恒汰, 濱口高征, 嶋田隆広, 平方寛之
2. 発表標題 高次トポロジカルなノ強誘電体の創出: SrTiO <sub>3</sub> 内き裂への負荷に関するPhase-field解析
3. 学会等名 材料シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高橋秀文, 福田恭之, 嶋田隆広, 平方寛之
2. 発表標題 二次元材料MoS <sub>2</sub> の面外電気-機械応答特性
3. 学会等名 材料シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takahiro Shimada, Yuuki Ichiki, Tao Xu, Le Van Lich, Jie Wang, Hiroyuki Hirakata
2. 発表標題 Quantum Polar Skyrmions/Merons in Doped SrTiO <sub>3</sub> Heterostructures: A Topological Polaron
3. 学会等名 2021 MRS Fall Meeting & Exhibits
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yu Wang, Takahiro Shimada, Shizhe Wu, Yuelin Zhang, Jinxing Zhang, Jie Wang, Hiroyuki Hirakata
2. 発表標題 Phase-Field Simulations on Temperature-Related Behaviors of Skyrmions
3. 学会等名 2021 MRS Fall Meeting & Exhibits
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

京都大学・教育研究活動データベース  
<https://kdb.iimc.kyoto-u.ac.jp/profile/ja.6bf4232c357d1db5.html>  
京都大学・材料物性学研究室  
<https://material.me.kyoto-u.ac.jp/>

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			
ベトナム	ハノイ工科大学			
中国	浙江大学	中国科学院		