



## 컴퓨터 스크리닝을 이용한 재료 설계 : 인버스 디자인 방법

글 \_ 임진오, 공기정, 장현주  
화학시뮬레이션연구센터 한국화학연구원

### 1. 서론

2013년 12월 미국의 대중적인 과학 잡지인 “Scientific American”의 표지에는 “The New Alchemists” 라는 제목이 원자들의 모형 그림과 함께 등장하고, 본문 중에는 “How Supercomputers Will Yield a Golden Age of Materials”의 제목의 심층 분석 글이 실려 있었다.<sup>1)</sup> 여기서 최근 들어 소재 개발의 새로운 방법으로 떠오르고 있는 컴퓨터를 이용한 High Throughput Screening (HTS)에 의한 재료설계에 대해 설명하고 있었다. 이렇듯 대중적인 잡지에서 “세계를 바꾸는 아이디어 2013”에 대한 심층 보고서로서 컴퓨터 스크리닝에 의한 재료 설계를 제시하고 있는 것을 보니 이제 컴퓨터를 이용한 재료설계 방법이 새로운 소재 설계 방법으로 인정받기 시작한 것임을 느낄 수 있어 이 분야의 연구를 하고 있는 연구자의 입장에서 매우 반가웠다.

기존의 “Trial & Error”와 연구자들의 경험에 의존하는 신규소재 개발에 걸리는 시간은 실험실에서의 테스트에서부터 상업적인 응용 제품이 나오기 까지 15-20년 정도 걸리는 것으로 알려져 있다. 이러한 신규 소재 개발의 시간을 혁신적으로 1/2 정도로 줄일 수 있는 방법으로 미국 정부는 2011년 전산모사 기반 소재 개발 인프라 구축을 선언하였다. 이러한 소재 물성 정보 및 데이터 처리를 인간의 계층 분석에서 이름을 차용하여 “Materials Genome Initiative (MGI)”라 명명하였다.<sup>2)</sup> 이러한 “Materials Genome Initiative”는 전산모사에 의한 재료 설계와

소재물성 데이터베이스, 그리고 실험의 3개의 축을 기반으로 하는 소재개발의 혁신적인 인프라로 청정에너지, 국가안보, 인류의 복지 등 모든 소재 분야의 차세대 소재 개발을 위해 4년간 500여명의 연구자에게 4000억원 규모의 연구비 투자가 이루어져 왔다. 이로서 2015년 2월에 미국 백악관은 이러한 연구 투자로 얻어진 전산모사에 의한 소재 물성 데이터베이스를 공개하겠다고 선언하였다.<sup>3)</sup> 이는 MGI 시작 단계에서부터 이 연구로 얻어진 데이터베이스의 공유 및 활용을 목적으로 하였고, 앞으로 많은 연구자들이 이를 활용하여 신소재 개발의 시간을 단축시키도록 돕겠다고 하였다. 한편 유럽에서도 미국의 MGI의 데이터베이스와 유사한 NoMaD (Novel Materials Discovery) repository를 운영하고 있으며 더 많은 연구자들에게 전산모사로 얻어진 물성 데이터베이스의 공유 및 활용을 권장하고 있다.<sup>4)</sup> 그 이외에도 합금 분야, 촉매 분야 등 분야별 물성 데이터 저장소 (data repository) 구축 및 활용이 활발해 지고 있다.

이번 원고에서는 이러한 전산모사에 의한 물성 데이터베이스 구축 및 이를 활용한 전산모사 스크리닝에 의한 재료 설계의 예를 살펴보고, target-oriented 재료설계 방법으로서, 필요한 물성으로부터 역으로 물질을 찾거나 만드는 방법인 “인버스 디자인 (Inverse Design)” 방법에 대해 소개하고자 한다.

### 2. 컴퓨터 스크리닝에 의한 재료 설계



컴퓨터 스크리닝에 의한 재료 설계 방법은 양자화학 또는 분자동역학 및 열역학의 전산모사에 기반을 둔 소재의 물성 계산과 계산으로부터 얻어진 물성의 데이터베이스 구축 및 데이터 마이닝 (data mining) 에 의한 새로운 소재 탐색으로 이루어진다.

양자화학 기반 소재 물성 계산, 즉 “ab initio” 계산 방법 또는 “제일원리” 계산방법의 특징은 물질을 구성하고 있는 원자의 위치만 알고 있다면 그 원자들을 이루고 있는 전자들간의 상호 작용을 기술하는 “슈뢰딩거 방정식”을 컴퓨터를 이용하여 수치 해석적으로 푸는 방법으로, 특정 소재의 물성은 그 소재를 이루는 원자의 구성과 그 위치만으로 특징지어 질 수 있는 방법이다. 이러한 방법의 전산모사에 의한 물성 계산 방법은 1960년대에 개발된 범밀도 함수법 (Density Functional Theory :DFT) 방법과 분자궤도 함수법을 이용한 계산 방법을 기반으로 하고 있다. 1980년대와 1990년대에 걸친 컴퓨터 하드웨어의 눈부신 발달로 최근 들어서는 이러한 계산방법을 이용하여 이전까지는 다루지 못했던 다원자 분자 또는 복잡한 결정구조 소재의 양자화학적 물성 해석이 가능하게 되었다. 이로서 범밀도 함수법의 Kohn과 분자궤도법의 Pople은 1998년 노벨 화학상을 받은바 있다. 특히 1990년대 말부터의 컴퓨터의 병렬화 기술의 발달은 수 퍼컴에 연결하지 않고도 개인용 PC의 병렬화 시스템 구축으로 대용량 계산이 실험실 수준에서 가능하게 되었다. 이러한 하드웨어의 획기적인 발전과 양자화학 기반 소프트웨어의 다양한 발전은 다양한 조성에 대한 물성 계산을 동시 다발적으로 수행 가능하게 하였고 1990년대 말부터 전산모사에 의한 소재 물성 데이터베이스 구축 및 스크리닝이 가능함을 보이는 연구들이 발표되기 시작하였다.

컴퓨터 스크리닝에 의한 재료 설계의 일반적인 단계는 좀 더 구체적으로 다음과 같다. 우선 이미 조성과 구조가 알려진 소재에 대한 양자화학적 계산으로 그 소재의 열역학적 안정성과 전자구조를 계산하고 이를 실험적으로 알려진 소재의 전자구조와의 비교 검증으로 계산 방법을 검증한다. 이러한 검증과정을 거친 다음, 기존의 알려진 결정구조 데이터베이스 및 분자구조 데이터베이스에서

얻을 수 있는 다양한 구조 및 조성의 소재에 대한 양자화학적 계산으로 물성 데이터베이스를 구축하고, 이에 더해 유사한 구조의 가상조성을 가지는 가상소재에 대한 물성 데이터베이스를 구축한다. 이렇게 얻어진 데이터베이스에서 원하는 특성을 가지는 소재조성을 찾아내는 스크리닝 또는 데이터 마이닝을 거쳐 신규소재의 후보군을 찾아내는 과정으로 이루어진다. 특히 이러한 물성 데이터베이스 구축을 위한 양자화학 계산에 입력과 출력 데이터 처리의 자동화 시스템이 도입되면서 수십만 개의 조성에 대한 “High Throughput Screening”이 가능하게 되었다.

실례로서 MIT 대학에서 수행하였던 전지 양극 소재에 대한 스크리닝 프로젝트인 “Alkaline Project”에서는 기존의 알려진 소재와 가상소재 13만 여개의 소재 조성에 대한 제일원리 전자 구조를 수행하여 200여개의 후보군을 찾아낸바 있다.<sup>1)</sup> 한편 Northwestern 대학의 Snurr 교수 그룹에서는 13만 여개의 가상 Metal Organic Framework (MOF) 구조를 만들고 경험적인 포텐셜을 이용한 Grand Canonical Monte Carlo (GCMC) 계산으로 메탄가스 저장률이 높은 300여개의 MOF 화합물을 제안하고, 이를 합성하여 메탄 저장 최적의 MOF인 NOTT-107을 개발하였다.<sup>5)</sup> 이러한 전산모사 스크리닝 재료 설계 방법은 다양한 분야의 소재 개발에 적용되어져, 리튬 이차전지의 양극 소재, 태양전지 소재, 광촉매 소재, 이산화탄소 포집 소재, 촉매소재, 열전소재, Topological Insulator, 등에서 성공적인 적용을 보여 주고 있다.<sup>6)</sup>

### 3. 빅데이터를 이용한 재료 설계

컴퓨터 하드웨어의 획기적인 발전과 물성 계산의 소프트웨어의 발전이 계산의 입력 및 출력을 제어하는 자동화 시스템과 결합하면서 물성 계산이 대용량으로 가능하게 하였다. 한편 미국의 MGI를 비롯한 많은 연구 그룹들이 계산으로 얻어진 물성 데이터베이스에 대한 공유로 미래의 환경 및 에너지 문제를 해결할 수 있는 혁신적인 소재 개발에 협력하고자 하고 있다.



Table 1. 물성 데이터베이스 저장소들

Repository	Site	Host	Materials
Materials Project	http://materialsproject.org	MIT	inorganic compounds
AFLOWLIB (Automatic -Flow for Materials Discovery)	http://www.aflowlib.org	Duke Univ.	inorganic compounds
Computational Materials Repository (CMR)	https://wiki.fysik.dtu.dk/cmri/	DTU	inorganic compounds
Electronic Structure Projects (ESP)	http://gurka.fysik.uu.se/ESP/	Sweden	inorganic compounds
Carnegie Mellon's Alloy Database	http://alloy.phys.cmu.edu/	CMU	alloys
NoMad (Novel Materials Discovery)	http://nomad-repository.eu/cms/	Germany	inorganic compounds
Hypothetical Metal-Organic Frameworks Database	http://hmofs.northwestern.edu/hc/crystals.php	Northwestern Univ.	MOFs
MatNavi NIMS Materials Database	http://mits.nims.go.jp/index_en.html	NIMS Japan	polymers, inorganic compounds
CEPDB Harvard Clean Energy Project Database	https://cepdb.molecularspace.org/	Harvard Univ.	organic molecules

### 3.1. 물성 데이터베이스 저장소

앞서 언급하였듯이 미국의 MGI 사업의 일환으로 만들어진 “Materials Project” 및 유럽의 NoMaD (Novel Materials Discovery) 등이 대표적인 물성 데이터베이스 저장소 (repository) 이며, 이외에도 세계 여러 그룹에서 물성 데이터베이스를 자체적으로 구축하여 운영하고 있다. 이러한 물성 데이터베이스 저장소의 대표적인 예를 Table 1에 정리하여 보았다. Table 1에서 볼 수 있듯이 많이 데이터베이스 저장소의 물성 데이터가 무기소재 물성에 집중되어 있다. 이는 무기소재의 경우 ICSD (Inorganic Crystal Structure Database)<sup>7)</sup> 라는 실험에서 알려진 17만 여개의 결정구조 데이터베이스가 잘 구축되어 있어 계산의 시작이 용이하며, DFT 기반 제일원리 계산이 결정구조 계산에 적합하여 High Throughput 대용량 계산이 쉽기 때문이다. 그러나 이러한 공개된 데이터베이스의 물성 값들이 아직은 계산 수준의 정확성이 떨어진 경우가 많아 실질적으로 소재 개발에 활용되기에는

좀 더 정교한 계산에서 얻어진 물성 데이터베이스 구축이 필요한 실정이다.

한편 최근 들어 Computational Materials Science, CAL-PHAD 등의 13개의 저널이 저널에 실리는 논문의 계산 결과들을 공유하는 정책을 채택하여 논문의 저자들에게 계산 결과 공유를 장려하고 있다.<sup>3)</sup> 특히 과학저널의 대표적인 출판사인 Elsevier에서는 연구 결과로서의 데이터를 공유하는 “Open Data” Service를 시작하였다. 이러한 노력들은 공개된 데이터베이스의 물성 데이터 값의 정확도를 높여 줄 수 있을 것이며, 향후 이러한 빅데이터를 활용한 재료설계가 가능할 것으로 기대된다.

### 3.2. Material Informatics

빅데이터를 분석하여 재료설계에 이용하는 중요한 방법 중에 하나로써 Material Informatics가 있다. 이 방법은 Fig. 1에 스케치 되었듯이 컴퓨터 시뮬레이션이나 실험적으로 얻어진 data들로 이루어진 빅데이터로부터 Principal Component Analysis (PCA)나 Partial Least Square (PLS)와 같은 데이터 마이닝 (data mining)의 방법을 이용하여 강한 상관관계를 갖는 구조와 물성을 분류거나 예측하는 모델을 만들고, 그러한 관계를 물리나 화학적 지식을 기반으로 이해하여 필요한 재료를 설계하는 것으로 이루어진다.<sup>8)</sup> 이러한 재료 설계 방법은 새롭게 물질을 만들어서 테스트하거나 계산하지 않고, 기존

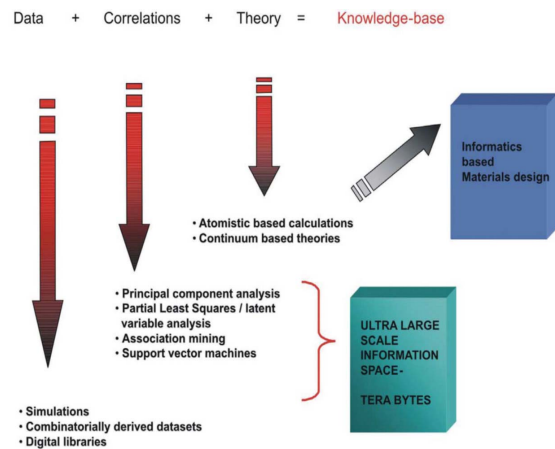


Fig. 1. Material Informatics를 이용한 재료 연구의 일반적인 단계.<sup>8)</sup>

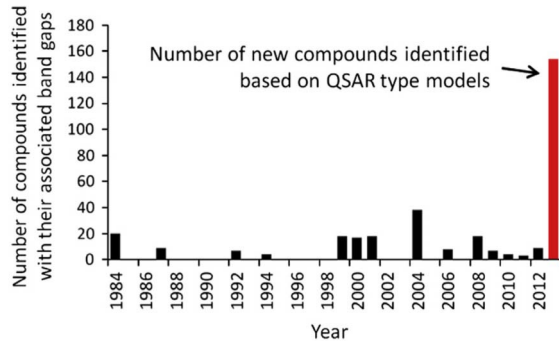


Fig. 2. Band gap이 알려진 chalcopyrite 물질의 연도에 따른 개수 변화.<sup>9)</sup>

에 만들어진 데이터를 분석해서 필요한 물질을 제시하기 때문에 매우 빠르게 연구를 진행 할 수 있는 장점이 있다. Iowa state 대학의 Krishna Rajan 교수와 그의 공동 연구자들은 이러한 방법을 이용하여 새로운 chalcopyrites solar energy conversion 물질을 제시하였다.<sup>9)</sup> 태양 빛을 효과적으로 사용가능한 에너지로 전환하기 위해서 1.0~2.6 eV 사이의 band gap을 가지는 물질이 필요한데, 이전의 연구까지는 적은 수의 chalcopyrites 물질에서만 band gap이 알려져 있었다. 이 연구에서는 이전까지 band gap이 알려진 44개의 direct band gap chalcopyrites 물질을 바탕으로 Material Informatics의 방법을 이용하여 200개 이상의 새로운 chalcopyrites 물질의 band gap을 예측하였다. Fig. 2는 이 연구 이전과 이후의 band gap이 알려진 chalcopyrites 물질의 수를 시간에 따라 보여주는데, Material Informatics 방법이 기존의 연구보다 더 빠르게 새로운 재료에 대한 물성을 연구 할 수 있음을 보여준다.

## 4. 인버스 디자인 (Inverse Design) 방법을 이용한 재료설계

### 4.1. 인버스 디자인 (Inverse Design)

인버스 디자인 방법은 target-oriented 재료설계 방법으로서, 필요한 물성으로부터 역으로 물질을 찾거나 만드는 방법을 의미한다. 기존에 해왔던 전통적인 재료설계 방법은 주로 주어진 물질의 물성을 먼저 조사한 후에 그

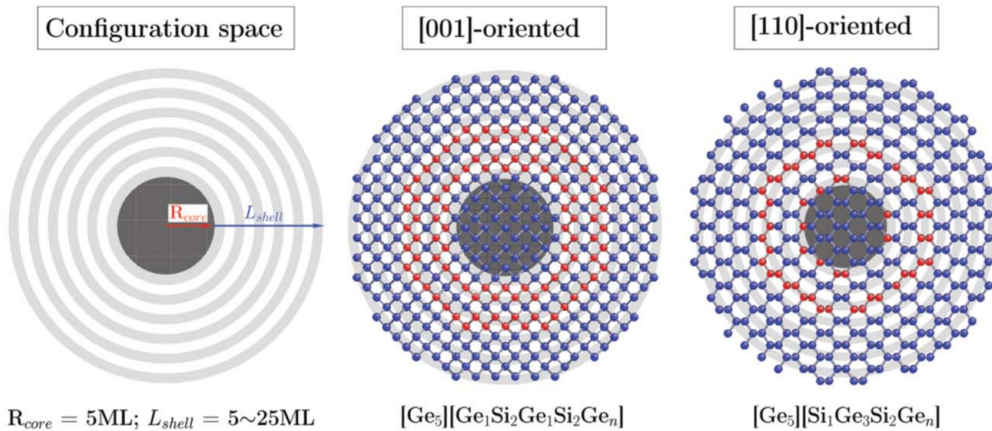
물성을 바탕으로 기존에 있던 기술을 발전시키거나 혹은 새로운 기술을 제시하는 형태로 이루어져왔다. 하지만 이러한 방법은 필요한 물성을 가지는 물질을 찾는 연구에 있어서 trial-and-error를 바탕으로 연구가 진행되기 때문에 빠른 기술발전을 필요로 하는 현재의 산업에서 재료설계의 bottle neck이 될 수 있다. 때문에 인버스 디자인을 이용한 재료설계가 다양한 영역에서 시도되고 연구되고 있다.

### 4.2. 인버스 디자인을 이용한 연구사례

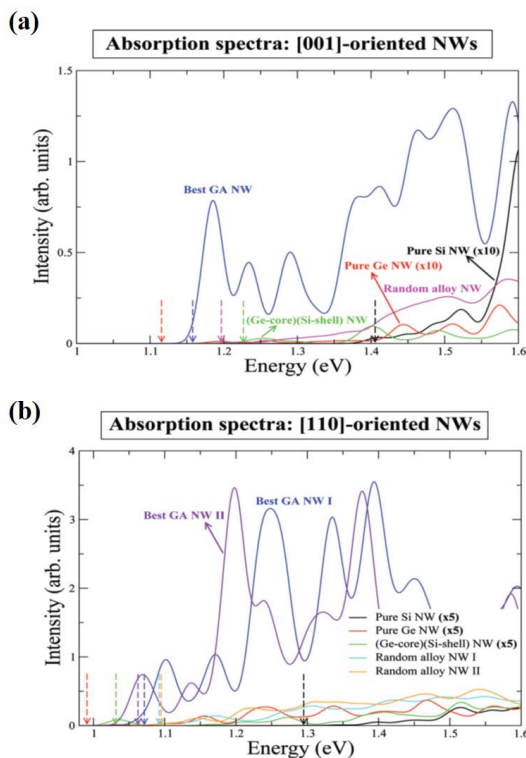
필요한 물성으로부터 물질을 찾는 인버스 디자인 연구 방법은 세부 방법에 따라서 다양한 형태로 이루어 질 수 있다. 앞서 이야기한 High-throughput 계산을 통한 스크리닝을 이용하여 물질을 찾을 수도 있고, 또한 데이터 마이닝을 이용한 빅데이터의 분석과 그것을 통해서 물질과 물성의 상관관계를 이끌어내어 필요한 물질을 예측하는 것도 인버스 디자인의 하나의 방법이 될 수 있다. 최근 미국에서는 National Renewable Energy Laboratory (NREL)를 중심으로 미국 Department of Energy Office of Science (DOE)의 지원을 받는 Center for Inverse Design (CID)를 설립하여 다양한 인버스 디자인의 방법론과 그 방법을 이용하여 새로운 재료를 설계하는 연구를 종합적으로 진행되었다.<sup>10)</sup> 이후에 서술되는 문단에서는 각기 다른 세부방법을 이용한 인버스 디자인을 이용한 대표적인 예를 통해서 인버스 디자인에 대하여 좀 더 자세히 설명하도록 하겠다.

#### 4.2.1 Inverse band structure

Inverse band structure (IBS) 방법은 합금이나 나노구조, 또는 superstructure와 같이 많은 수의 compositional/structural configuration이 존재하는 시스템에서 simulated annealing<sup>11)</sup>이나 genetic algorithm<sup>12)</sup>과 같은 sampling 방법과 결합한 컴퓨터 시뮬레이션을 이용하여 가장 적절한 전자구조 (electronic band structure) 을 가지는 configuration을 효율적으로 찾아내는 방법으로 1990년대부터 연구되어 왔다. Molecular beam epitaxy나 metal-organic chemical vapor deposition과 같이 열역학적으로



**Fig. 3.** Si/Ge Core/Multishell 나노와이어의 원자구조. 가장 왼쪽의 그림은 일반적인 Core/Multishell의 나노와이어의 구조를 보여주고, 가운데는 Ge를 core로 가지고 Ge1-Si2-Ge1-Si2-Ge1의 순서로 [001] 방향으로 길러진 나노와이어의 원자구조이고, 가장 오른쪽 그림은 Ge를 core로 가지고 Si1-Ge3-Si2-Ge1의 순서로 [110] 방향으로 길러진 나노와이어의 원자구조를 보여준다.<sup>15)</sup>



**Fig. 4.** (a) [001] 방향으로 길러진 Si/Ge Core/Multishell 나노와이어, (b) [110] 방향으로 길러진 Si/Ge Core/Multishell 나노와이어의 광흡수 곡선을 보여준다. (a)의 best configuration은 Fig. 3의 가운데에 소개된 구조이고 (b)의 best configuration은 Fig. 3의 가장 오른쪽에 소개된 구조와 Ge를 core로 가지고 Ge4-Si2-Ge1의 순서로 [110] 방향으로 길러진 나노와이어가 해당된다.<sup>15)</sup>

안정한 결정 구조에서 벗어나 다양한 atomic structure를 성장시킬 수 있는 새로운 방법의 등장과 함께, IBS는 많은 수의 configuration을 효율적으로 연구할 수 있는 수단으로서 제시되었다.<sup>13)</sup>

IBS 방법을 이용한 대표적인 연구사례로는 Si를 기반으로 한 나노와이어 구조에서 강한 optical activity를 갖는 configuration을 찾는 연구가 있다. optoelectronics에서는 좋은 전기적 성질과 광학적 성질이 모두 요구되는데 Si의 경우 뛰어난 전자적 성질 때문에 지금까지 반도체 분야에서 많은 연구 노하우가 쌓여 있는 반면, indirect gap을 갖는 특성 때문에 optoelectronics 분야에서 뛰어난 성능을 보여주지 못하였다. 그래서 지금까지 계속해서 Si의 좋은 전기적 성질을 유지하면서 광학적 성질을 증가시키는 많은 연구가 시도되어 왔다. 그중에서 가장 중요하게 여겨진 방법 중의 하나는 Si와 Ge이 layer-by-layer superstructure로 만들어질 때 생겨난 quantum confinement, zone-folding, 그리고 interband coupling을 이용하여 Si와 Ge에서 인위적으로 direct bandgap을 만드는 것이다.<sup>14)</sup> Lijun Zhang 등은 genetic algorithm을 적용한 IBS 방법을 사용하여 Si/Ge multishell 나노와이어 구조에서 Si/Ge의 growth 방향과, Si와 Ge의 sequence pattern, 그리고 core 물질의 종류에 의해 정해지는 많은 configuration 중에 가장 좋은 configuration을 찾는 연구를 수행하



였다 (Fig. 3).<sup>15)</sup> 그 결과 i) Ge core가 Si core에 비해 direct-gap transition을 증가시키고, ii) [001] 나노와이어와 [011] 나노와이어만이 direct gap을 만드는 것을 확인하였고, 그리고 iii) Si/Ge의 multishell 구조가 pure Si/Ge의 single shell 구조나 균일한 alloy 나노와이어보다 더 뛰어난 direct-gap transition을 보이는 것을 확인하였다. 이러한 경향성과 함께, [001] 방향으로 길러진 나노와이어에서는 [Ge5]-[Ge1Si2Ge1Si2Gen] 구조가 가장 뛰어난 direct bandgap transition을 가짐을 Fig. 4 (a)에 보였고, [110] 방향으로 길러진 나노와이어에서는 [Ge5]-[Si1Ge3Si2Gen] 구조와 [Ge5]-[Ge4Si2Gen] 구조가 가장 뛰어난 성능을 가지는 것을 Fig. 4(b)에서 보였다. 이러한 계산 결과는 뛰어난 광학적 성질을 갖는 Si/Ge based 물질을 만드는데 좋은 가이드라인을 제시 할 수 있다.

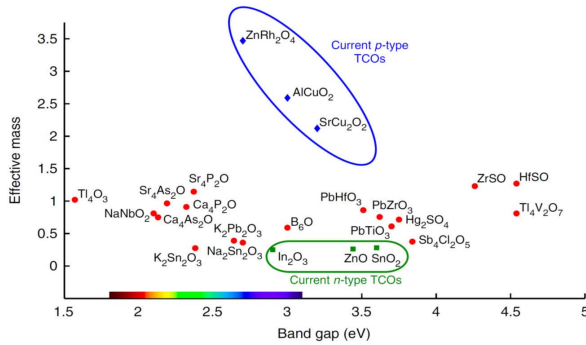
#### 4.2.2. Material design with high-throughput screening

두 번째로 소개될 인버스 디자인 연구방법은 High-throughput 계산을 통해서 많은 물질을 스크리닝하여 필요한 물성을 갖는 물질을 찾아내는 것이다. 이 방법은 앞에서 서술된 방법과는 다르게 sampling 방법을 이용하지 않기 때문에, 서로 연관성이 작은 다양하고 많은 물질들이 포함된 물질 군에 효과적으로 적용 될 수 있다. 일반적인 연구의 흐름은 우선 주어진 응용분야에서 필요한 기능들을 얻기 위해 반드시 만족시켜야 하는 물성들을 정의하고, 물리적 화학적 지식을 이용해 어느 정도 pre-screen된 물질 군중에서 high-throughput 계산을 통해서 앞에서 정의된 물성들을 만족시키는 물질을 찾는 형태로 이루어진다. 앞에서 언급된 물질들은 high-throughput 계산을 통한 인버스 디자인 방법에서 가장 중요한 parameter로 여겨지기 때문에 “Design Principle” (DP)이라고 불리기도 한다. DP는 주로 선행된 연구결과로부터 결정된다. 예를 들어서, p-type transparent conductor의 경우 가시광선 영역의 빛을 흡수하지 않는 동시에 높은 mobility를 갖는 hole carrier가 물질 안에서 많이 생성되는 것이 필요하다. 이러한 기능들은 다음의 4가지 DP를 만족시키는 물질, 즉 i) 3.1 eV보다 넓은 band gap, ii) 작은 hole effective mass, iii) 낮은 formation energy를 갖는

hole producer defect를 가지고, 그리고 iv) oxygen vacancy와 같은 hole-killer를 갖지 않는 물질을 통해서 달성될 수 있다.<sup>16)</sup> 앞에서 언급된 4가지 DP중에 i) 과 ii) 는 고체의 전자구조의 이해를 통해서 제시될 수 있었고, iii) 과 iv) 는 ZnO나 GaN와 같은 wide bandgap semiconductor에서 광범위하게 연구된 defect physics<sup>17)</sup>의 지식들을 통해서 제시 될 수 있었다.

다음에서는 High-throughput 스크리닝을 이용한 인버스 디자인의 대표적인 연구사례로서 새로운 p-type transparent conducting 물질을 찾는 연구에 대해 자세히 살펴 보겠다. Transparent conducting 물질은 가시광선영역의 빛은 거의 흡수 하지 않고 동시에 높은 전기 전도도를 갖는 물질을 말하는데, solar Cell이나 transparent device를 만드는데 필수적으로 사용되는 물질이다. Al-doped ZnO 나 Sn-doped In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>과 같이 높은 전기전도도를 갖는 n-type transparent conducting 물질은 상용화되어 널리 이용되는 반면, p-type의 경우 아직까지도 상용화되어 이용될 만큼의 성능을 가진 transparent conducting 물질은 발견되지 않았다. 이것은 가시광선 영역의 빛을 대부분 투과하기 위해 필요한 3.1 eV 이상의 band gap을 갖는 물질이 많은 경우에 산화물로서 존재하는데 이 경우에 oxygen의 강한 electron negativity 때문에 hole이 localize 되는 경향을 보이기 때문이다.<sup>18)</sup> Transparent conducting 물질의 경우 앞에서 제시된 DP에서 확인할 수 있듯이 여러 가지 성질이 동시에 만족되어야 하는 복잡성 때문에 기존의 trial-and-error의 방법으로는 새로운 p-type 물질을 찾기 어렵고, 대신에 인버스 디자인을 통한 연구가 필요하게 되었다.

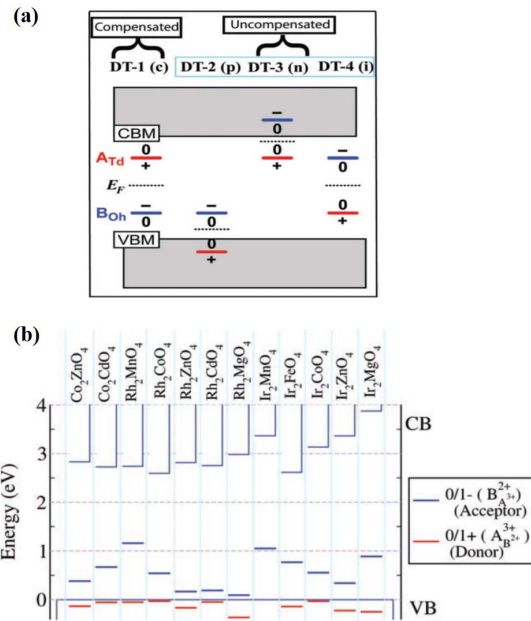
High-throughput 스크리닝을 이용한 p-type transparent conducting 물질을 찾는 연구는 여러 연구그룹에서 이루어졌다. G. Hautier 등은 3000여개의 ternary oxide에 대해서 high-throughput 전자구조계산을 수행하여 앞에서 언급된 DP를 만족시키는 물질을 스크리닝 하는 연구를 수행하였다.<sup>19)</sup> Fig. 5에서는 여러 가지 물질의 band gap과 hole effective mass가 계산되었고, 그 중에 적절한 band gap과 hole effective mass를 가지는 물질에 대해 defect formation energy 계산을 통해서 intrinsic hole-



**Fig. 5.** High-throughput 계산을 통해 조사된 여러 가지 산화물의 band gap과 hole effective mass plot. 파란색으로 그려진 타원 안에는 현재 p-type transparent conducting oxide (TCO)로 알려진 물질이 표시되어 있고, 녹색색으로 그려진 타원 안에는 현재 n-type TCO로 사용되는 물질이 비교되었다.

killer defect 가 존재하는지의 여부도 조사되었다. 그 결과를 바탕으로 B<sub>6</sub>O, (K/Na)<sub>2</sub>Sn<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 그리고 ZrOS가 p-type transparent conducting 물질로서 사용될 수 있음을 제시하였다.

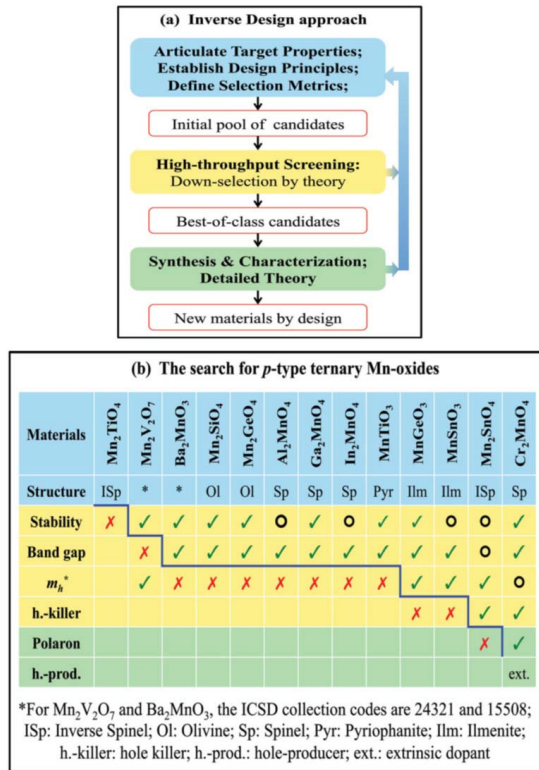
National Renewable Energy Laboratory가 중심이 된 다른 리서치 그룹에서는 좀더 optimize 된 여러 가지 물질 군에 대해서 선택적으로 high-throughput 스크리닝을 적용한 인버스 디자인 연구를 수행하였다. pre-screen된 물질 군은 스피넬 (spinel) 구조를 가지는 AB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>와 Mn<sup>2+</sup>-based ternary 산화물, 그리고 Cu<sup>1+</sup>/Ag<sup>1+</sup>-based ternary compound등이 포함된다. 각각의 물질 군에 공통적으로 포함되어 있는 transition metal은 산소의 2p-orbital과 결합하면서 valence band가 modulate되어 좀 더 작은 hole effective mass를 갖게끔 만드는 것으로 알려져 있다.<sup>20)</sup> 동시에, 스피넬 구조를 가지는 AB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>의 경우 eighteen electron closed shell을 가지고, Mn<sup>2+</sup>-based ternary 산화물의 경우 Mn이 high-spin configuration을 가짐으로서 d<sup>5</sup> closed shell을 가지고, 그리고 Cu<sup>1+</sup>/Ag<sup>1+</sup>-based ternary compound의 경우 Cu와 Ag가 d-orbital 에 10개의 전자를 모두 채우는 d<sup>10</sup> closed shell을 가지는 insulator로써 가시광선의 투과에 필요한 충분한 band gap을 가질 수 있도록 선택되었다. 이러한 pre-screening 과정에 의해 좀 더 optimize된 물질 군에 대해서 최종적으로 high-through-



**Fig. 6.** Defect level에 따른 doping rule의 분류와 hole doping rule을 따르는 물질들. 왼쪽그림에서 빨간색 실선은 band gap안에서 donor level의 위치를 나타내고 파란색 실선은 acceptor level의 위치를 나타낸다. Hole-doping을 위한 doping rule은 왼쪽 그림에서 DT-2(p)로 표시되고 오른쪽 그림에서 DT-2를 만족시키는 AB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 스피넬 물질들이 정리되어 있다.

put 계산을 통해서 모든 DP, 특히 doping rule을 만족시키는 물질을 찾게 된다. Fig. 6에서 보듯이 AB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>의 물질 군중에서 p-type의 doping rule을 만족시키는 물질들이 screening 되었고, Co<sub>2</sub>ZnO<sub>4</sub>가 p-type TC의 DP를 가장 잘 만족시키는 물질로 제시 되었다.<sup>21)</sup> Mn<sup>2+</sup>를 기반으로 한 물질 군의 경우도 High-throughput 계산을 통하여 p-type doping을 위한 DP가 잘 만족되는지 조사되었고 (Fig. 7), Cr<sub>2</sub>MnO<sub>4</sub>가 promising한 candidate로 제시되었다.<sup>22)</sup>

필자(JI)가 주로 연구한 Cu<sup>1+</sup>/Ag<sup>1+</sup>-based ternary compound의 경우 high-throughput 계산을 통한 스크리닝은 아직 수행되지 않았지만 몇 가지 case study를 통해 물질의 구조와 구성성분이 DP에 미치는 영향에 대해서 연구되었다. 대상이 된 물질은 Cu<sub>3</sub>VO<sub>4</sub>과 Ag<sub>3</sub>VO<sub>4</sub>인데 이 물질들은 구조적인 특성상 두 개의 parent binary 물질, 즉 (Ag/Cu)<sub>2</sub>O와 V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>가 서로 결합되어 나타나는 물질로 이



**Fig. 7.** Mn-based ternary 산화물과 p-type transparent conducting 물질의 design principle (DP). (a) 인버스 디자인의 일반적인 단계가 순서대로 그려져 있다. (b) p-type transparent conducting 물질의 DP를 만족시키는 정도에 따라 Mn<sup>2+</sup>-based 물질들이 정렬되어 있다.

해할 수 있다. (Ag/Cu)<sub>2</sub>O는 intrinsic hole producer defect (Ag/Cu)-vacancy를 갖지만 동시에 O-vacancy와 같은 hole-killer defect가 낮은 formation energy를 가지고 형성될 수 있기 때문에 좋은 p-type dopability를 보여주지 않는 반면, V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>의 경우 oxygen이 vanadium 주변에 tetrahedral 구조로 단단하게 묶여있기 때문에 O-vacancy가 생기기 어려운 특성을 가진다. (Ag/Cu)<sub>3</sub>VO<sub>4</sub>의 경우 두 개의 parent binary 물질이 갖는 보완적인 특성을 동시에 가지게 되어 hole-producer defect를 가짐과 동시에 hole-killer defect formation energy가 올라가게 되어 p-type transparent conducting 물질의 DP를 더 잘 만족시킬 수 있음을 보여주었다.<sup>16)</sup> 이러한 연구 결과는 서로 보완적인 특성을 가진 parent binary 물질을 결합함으로써 더

좋은 성능의 새로운 물질을 개발할 수 있는 새로운 전략을 보여주었다. 여기서 더 나아가 Ag<sub>3</sub>VO<sub>4</sub>에 K를 첨가하였을 때 일어나는 구조상의 변화가 Ag-vacancy와 같은 hole-producer defect의 formation energy를 낮춤으로써 좀 더 좋은 p-type 물질을 만들 수 있음을 계산을 통해서 보였다.<sup>23)</sup> 현재 이러한 전략의 적용 가능성에 대해서 Ag/Cu를 포함하고 V/Nb/Ta를 포함하는 좀 더 넓은 물질군에 대해서 high-throughput 계산을 통한 연구가 진행되고 있다.

### 5. 맺는 말

앞에서 기술한 바와 같이 컴퓨터를 이용한 재료설계 분야는 급속하게 확장되는 분야이며, 제시된 예들은 컴퓨터를 이용한 재료 설계 방법이 실제로 활용 가능성을 보여주고 있다. 그러나 소재 개발 자체가 특허권과 밀접한 관계가 있어 공개 되지 않는 컴퓨터를 이용한 재료 설계의 예들이 많이 있을 것으로 추정된다. 특히 국내 소재 관련 대기업에서도 양자화학적 계산에 의한 자체적인 소규모의 물성 데이터베이스를 구축하고 실제 소재 개발에 활용하고 있는 것으로 알려지고 있다. 한편 미국의 “Materials Genome Initiatives”처럼 공공의 목적으로 대량의 계산된 물성 데이터베이스가 공개되어 지고 있으나, 아직은 공개된 빅데이터만으로 재료를 설계하기에는 어려움이 있다. 이는 빅데이터에서 제공되는 물성의 정확성, 그리고 계산된 값과 실제 재료 설계에서 측정할 수 있는 파라미터들과의 상관관계에 대한 정확한 이해 및 적합한 Design Principle (DP)의 설정의 과정이 필수적이기 때문이다. 이러한 문제점들을 극복하기 위해 제안된 방법이 “인버스 디자인” 방법으로 알려져 있다. 이러한 타겟 지향적인 인버스 디자인 방법은 대용량 물성 계산의 양을 줄여 주면서 재료 설계의 목적을 빠르게 달성할 수 있게 해 줄 것이라 기대된다.

### 참고문헌

1. G. Ceder and K. Persson, “How Supercomputers Will





- Yield a Golden Age of Materials Science,” *Sci. Am.*, **309** [6] 36-40 (2013).
2. <http://www.whitehouse.gov/mgi>
  3. <http://www.whitehouse.gov/blog/2015/02/06/its-time-open-materials-science-data>
  4. <http://nomad-repository.eu/cms/>
  5. C. E. Wilmer, M. Leaf, C. Y. Lee, O. K. Farha, B. G. Hauser, J. T. Hupp and R. Q. Snurr, “Large-scale Screening of Hypothetical Metal-Organic Frameworks,” *Nat. Chem.*, **4** 83-89 (2012).
  6. S. Curtarolo, G. L. W. Hart, M. B. Nardelli, N. Mingo, S. Sanvito and O. Levy, “The High-throughput Highway to Computational Materials Design,” *Nat. Mat.*, **12** 191-201 (2013).
  7. [http://www.fiz-karlsruhe.de/icsd\\_web.html](http://www.fiz-karlsruhe.de/icsd_web.html)
  8. K. Rajan, “Materials Informatics,” *Mater. Today*, **8** 38-45 (2005).
  9. P. Dey, J. Bible, S. Datta, S. Broderick, J. Jasinski, M. Sunkara, M. Menon, and K. Rajan, “Informatics-aided Bandgap Engineering for Solar Materials,” *Comp. Mater. Sci.*, **83** 185-195 (2014).
  10. Center for Inverse Design <http://www.centerforinversedesign.org/>
  11. S. Kirkpatrick, C. D. Gelatt, and M. P. Vecchi, “Optimization by Simulated Annealing,” *Science*, **13** 671-680 (1983); V. Cerny, “Thermodynamical Approach to The Traveling Salesman Problem - An Efficient Simulation Algorithm,” *J. Optimiz. Theory App.*, **45** 41-51 (1985).
  12. N. Barricelli, “Esempi Numerici di Processi di Evoluzione,” *Methodos*, 45-68 (1954).
  13. A. Franceschetti and A. Zunger, “The Inverse Band-structure Problem of Finding an Atomic Configuration with Given Electronic Properties,” *Nature*, **402** 60 (1999).
  14. T. P. Pearsall, J. Bevk, L. C. Feldman, J. M. Bonar, J. P. Mannaerts, and A. Ourmazd, “Structurally Induced Optical Transitions in Ge-Si Superlattices,” *Phys. Rev. Lett.*, **58** 729-32 (1987); R. Zachai, K. Eberl, G. Abstreiter, E. Kasper, and H. Kibbel, “Photoluminescence in Short-period Si/Ge Strained-layer Superlattices,” *Phys. Rev. Lett.*, **64** 1055-59 (1990). U. Menczgar, G. Abstreiter, J. Olajos, H. Grimmeiss, H. Kibbel, H. Presting, and E. Kasper, “Enhanced Band-gap Luminescence in Strain-symmetrized (Si)*m*/(Ge)*n* Superlattices,” *Phys. Rev. B*, **47** 4099-4102 (1993).
  15. L. Zhang, M. d’Avezac, J.-W. Luo, and A. Zunger, “Genomic Design of Strong Direct-Gap Optical Transition in Si/Ge Core/Multishell Nanowires,” *Nano. Lett.*, **12** 984-92 (2012).
  16. G. Trimarchi, H. Peng, J. Im, A. J. Freeman, V. Cloet, A. Raw, K. R. Poeppelmeier, K. Biswas, S. Lany, and A. Zunger, “Using Design Principles to Systematically Plan the Synthesis of Hole-conducting Transparent Oxides: Cu<sub>3</sub>VO<sub>4</sub> and Ag<sub>3</sub>VO<sub>4</sub> as a Case Study,” *Phys. Rev. B*, **84** 165116 (2011).
  17. C. Freysoldt, B. Grabowski, T. Hickel, J. Neugebauer, G. Kresse, A. Janotti, and C. G. Van de Walle, “First-principles Calculations for Point Defects in Solids,” *Rev. Mod. Phys.*, **86** 253-305 (2014)
  18. A. Zunger, “Practical Doping Principles,” *App. Phys. Lett.*, **83** 57-59 (2003).
  19. G. Hautier, A. Miglio, G. Ceder, G.-M. Rignanese, and X. Gonze, “Identification and Design Principles of Low Hole Effective Mass p-type Transparent Conducting Oxides,” *Nat. Commun.*, **4** (2292) 1-7 (2013).
  20. H. Kawazoe, M. Yasukawa, H. Hyodo, M. Kurita, H. Yanagi and H. Hosono, “P-type Electrical Conduction in Transparent Thin Films of CuAlO<sub>2</sub>,” *Nature*, **389** 939-42 (1997).
  21. T. R. Paudel, A. Zakutayev, S. Lany, M. d’Avezac, and A. Zunger, “Doping Rules and Doping Prototypes in A<sub>2</sub>BO<sub>4</sub> Spinel Oxides,” *Adv. Funct. Mater.*, **21** 4439-501 (2011).
  22. H. Peng, A. Zakutayev, S. Lany, T. R. Paudel, M. d’Avezac, P. F. Ndione, J. D. Perkins, D. S. Ginley, A. R. Nagaraja, N. H. Perry, T. O. Mason, and A. Zunger, “Li-Doped Cr<sub>2</sub>MnO<sub>4</sub>: A New p-Type Transparent Conducting Oxide by Computational Materials Design,” *Adv. Funct. Mater.*, **23** 5267-76 (2013).
  23. J. Im, G. Trimarchi, H. Peng, A. J. Freeman, V. Cloet, A. Raw and K. R. Poeppelmeier, “KAg<sub>11</sub>(VO<sub>4</sub>)<sub>4</sub> as a Candidate P-type Transparent Conducting Oxide,” *J. Chem. Phys.*, **138** 194703 (2013).

## ●● 임진오



- 2009년 서울대학교 물리천문학부 박사 졸업
- 2009-2010년 University of California, Davis, 물리학과 박사후연구원
- 2010-2014년 Northwestern University, 물리학과 박사후연구원
- 2014년-현재 한국화학연구원 선임연구원

## ●● 공기정



- 1999년 서울대학교 물리학과 박사 졸업
- 1999-2002년 서울 시립대 양자정보처리 연구단 연구원
- 2002년-현재 한국화학연구원 책임연구원

## ●● 장현주



- 1995년 Michigan State Univ. 물리학과 박사 졸업
- 1995-1996년 Northwestern University, 재료공학과 박사후연구원
- 1996년-현재 한국화학연구원 책임연구원