

## 다성분계 물성을 예측하기 위한 BaTiO<sub>3</sub>기반 계산과학 플랫폼 구축

이동건<sup>1,2</sup> · 이한욱<sup>1,3</sup> · 임원빈<sup>2</sup> · 고현석<sup>1,+</sup> · 조성범<sup>1,3,+</sup>

### Establishment of a BaTiO<sub>3</sub>-based Computational Science Platform to Predict Multi-component Properties

Dong Geon Lee<sup>1,2</sup>, Han Uk Lee<sup>1,3</sup>, Won Bin Im<sup>2</sup>, Hyunseok Ko<sup>1,+</sup>, and Sung Beom Cho<sup>1,3,+\*</sup>

#### Abstract

Baum titanate (BaTiO<sub>3</sub>) is considered to be a beneficial ceramic material for multilayer ceramic capacitor (MLCC) applications because of its high dielectric constant and low dielectric loss. Numerous attempts have been made to improve the physical properties of BaTiO<sub>3</sub> in response to recent market trends by employing multicomponent alloying strategies. However, owing to its significant number of atomic combinations and unpredictable physical properties, finding a traditional experimental approach to develop multicomponent systems is difficult; the development of such systems is also time-consuming. In this study, 168 new structures were fabricated using special quasi-random structures (SQSs) of Ba<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>Ti<sub>1-y</sub>Zr<sub>y</sub>O<sub>3</sub>, and 1680 physical properties were extracted from first-principles calculations. In addition, we built an integrated database to manage the computational results, and will provide big data solutions by performing data analysis combined with AI modeling. We believe that our research will enable the global materials market to realize digital transformation through datalization and intelligence of the material development process.

**Keywords:** Multilayer ceramic capacitors, BaTiO<sub>3</sub> material, Special quasirandom structures, The first-principles calculations

#### 1. 서 론

BaTiO<sub>3</sub>는 1950년대 강유전 특성의 발견 이후로, 유전체 또는 압전체로 유망한 후보물질로써 압력 센서, 압전 에너지 하베스터 분야 등 재료 연구 및 첨단 기술 응용 분야에서 연구가 활발하다[1,2]. 또한, 최근 전기자동차와 IT 기기 등의 급격한 발전에 따라, 응용기기에 맞는 다양한 물성들이 요구되고 있다[3]. 더군다나 전자기기 산업에서 부품의 소형화, 고성능화, 저비용화 추세에 따라 금속 기반 내부 전극(BME, base-metal internal electrode)와 더 얇은 유전체층을 사용하는 다층 세라믹 커패시

터(MLCCs; multilayer ceramic capacitors)의 연구가 활발하다. 커패시터는 전기를 축적하거나 방출하여 전자 기기내의 전기 흐름을 안정적으로 조절하고 부품 간의 간섭을 막아주는 역할을 하며, 최근에는 전기자동차와 같은 고전압, 휴대기기와 같은 저전력 기기에 따라 그 요구성능이 다양화되고 있으며, 전자기기 에 들어가는 그 양도 급속하게 증가하고 있다. BaTiO<sub>3</sub>은 유전율이 높고 손실이 적기 때문에 MLCC에 널리 사용되는 가장 우수한 세라믹 재료 중 하나이다 [4]. BaTiO<sub>3</sub>의 다양한 응용기기에 맞는 물성을 얻기 위하여 실험적으로 도핑을 통해 다성분계를 만드는 연구가 진행되었다[5,6]. 하지만, 실험적으로 다성분계에 대한 연구는 dopant의 후보 원소, 비율, 그리고 공정에 대한 변수 등 다양한 변수들로 목표하는 스펙을 갖춘 물성을 찾기에 많은 시행착오를 동반할 수밖에 없다. 특히나, 한가지의 샘플을 만들기 위해 다양한 연속공정을 거치고, 관련된 공정변수도 모두 제어가 필요하기 때문에, BaTiO<sub>3</sub> 조성과 관련된 연구는 많은 시간과 비용이 소모된다. 이러한 이유로, 실험적으로는 결정의 물리적, 화학적 특성을 탐구하기 위한 노력에도 불구하고 특성을 명확하게 이해하기 어렵다[7,8].

게다가, 최근 이러한 문제점을 해결하기 위해 전산재료 과학 기법을 통한 시도가 있었으나, 다성분계에 대한 기술이 어려워 예측된 이론값은 매우 제한적이며, 여전히 많은 시행착오를 요

<sup>1</sup>Center of Materials Digitalization, Korea Institute of Ceramic Engineering and Technology (KICET), Jinju 52851, Republic of Korea

<sup>2</sup>Division of Materials Science and Engineering, Hanyang University, Seoul 04763, Republic of Korea

<sup>3</sup>Department of Materials Science and Engineering, Ajou University, Suwon 16499, Republic of Korea

\*Corresponding author: hko@kicet.re.kr, csb@ajou.ac.kr

(Received: Aug. 17, 2022, Accepted: Aug. 22, 2022)

This is an Open Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License(<https://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0/>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

구하는 실험적인 방법에 의존하여 새로운 조성개발은 많은 시간이 소요될 수밖에 없다 [9-11].

본 연구에서는, 전산재료과학기법을 활용해 다양한 다성분계 BaTiO<sub>3</sub>의 조성군에 대해 안정성과 물성의 이론치를 예측하고, 이를 데이터베이스화 하여, 향후 인공지능을 활용할 수 있는 기반을 마련하였다.

## 2. 계산 방법

본 연구에 필요한 밀도범함수이론(DFT, density functional theory)계산은 Vienna Ab-initio Simulation(VASP) 패키지와 projector-augmented wave(PAW) 방법을 사용하였다[12,13]. Electronic wave function는 구조 최적화 동안 Pulay stress를 최소화하기 위하여 520eV의 plane wave cutoff 에너지로 설정되었다. Hellmann-Feynman 힘은 0.001 eV/Å로 임계값을 맞추어 구조최적화 중 이 값에 도달하면 계산이 완료되도록 하였다. Kpoint의 경우 빠른 계산을 위해 gamma-point만 계산하였다. BaTiO<sub>3</sub>에 도핑되어 실험으로 제조되어진 적 있는 칼슘, 지르코늄(Ca<sup>2+</sup>, Zr<sup>4+</sup>)를 도핑하여 Ba<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>Ti<sub>1-y</sub>Zr<sub>y</sub>O<sub>3</sub>조성 계산을 먼저 진행하였다[14]. Ba는 5s, 5p, 6s 상태 Ca는 3s, 3p, 4s 상태, Ti는 3d, 4s 상태, Zr는 4s, 4p, 5s, 4d 상태, O는 2s, 2p 상태를 원자가 상태로 고려하고 원자가 전자의 exchange-correlation 에너지는 일반화된 기울기 근사 (GGA, generalized gradient approximation)의 Perdew–Burke–Ernzerhof 매개변수화로 계산되었다[15]. 하지만 GGA는 각 지점의 exchange-correlation potential이 그 점과 바로 이웃한 점의 전자밀도에 의해서만 결정되기 때문에 correlation에너지와 exchange 에너지에 오차가 발생하고 이를 보정해 줄 필요가 있다[16]. 이러한 오차를 mean-field에서 발생하는 correlation 에너지 오차를 보정하는 방법인 DFT+U를 사용하였다. 우리는 합금 이론 자동화 툴킷(ATAT, alloy theoretic automated toolkit)에 제공된 mcsqs 코드를 사용하여 특수 준 난수 구조(SQS, special quasirandom structures)로 Ba<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>Ti<sub>1-y</sub>Zr<sub>y</sub>O<sub>3</sub>의 랜덤 합금 시스템을 모델링하였다[17,18]. 합금 시스템은 다양한 조성을 가질 수 있어야 하며 완전히 수렴된 에너지를 얻어야 하므로 모든 SQS 셀에 대해 135개의 원자 수를 가지게 만들었다.

본 연구에서 추출한 물성은 크게 기본 결정구조 정보, 물질의 열역학 데이터, 물질의 성능 지표를 기준으로 3가지와 미래 차용 전자소재로 사용하기 위하여 고온 신뢰성 확보와 유전특성과 상관관계를 보이는 물성을 선정하였다. 기본 결정구조 정보로는 원자 밀도(Atomic mass density), 원자 부피(Atomic volume), 격자 상수 비율(c/a ratio)를 선정하였다. 열역학 데이터로는 열역학 데이터를 통해 물질의 안정성을 평가하기 위해 상 안정도(Energy Above Convex Hull), 형성 에너지(Formation Energy)를 선정하였다. 또한, 미래 차용 전자소재로서 사용하기

위해 고온 신뢰성 확보와 유전특성과 상관관계를 보이는 물성을 문헌 조사를 통해 밴드갭(Band gap), HOMO 에너지(HOMO energy, highest occupied molecular orbital energy), s-오비탈 원자가 전자 평균 개수(Average of s Valence Electrons), p-오비탈 원자가 전자 평균 개수(Fraction of p Valence Electrons), 최소 전기음성도 차이(Minimum Electronegativity Difference)가 상관관계를 가진다고 확인하여 추출 물성으로 선정하였다[19,20].

## 3. 결과 및 고찰

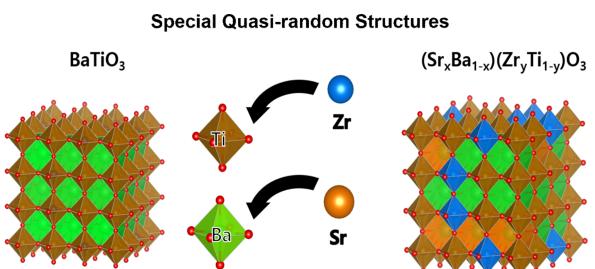
### 3.1 결정 구조 생성

본 연구에서 입방체(Cubic), 정방정계(Tetragonal) 상 두가지의 BaTiO<sub>3</sub> 복크 구조를 3×3×3 확장한 슈퍼 셀 구조로 만들었다. 입방체, 정방정계 구조 모두 총 135개의 원소로 Ba 27개, Ti 27개, O 81개의 구성으로 이루어져 있다. 합리적인 복크 구조를 얻기 위하여, Fig. 1의 그림처럼 특수 준 난수 구조를 이용하여, 각각의 도편트들이 무작위적으로 섞이게 구조를 생성한다. 우리는 Ba 27개의 원소 자리에 Ca를 1개에서부터 14개, Ti 27개의 원소 자리에 Zr를 1개에서부터 6개까지의 모든 경우의 수를 고려하여 입방체, 정방정계 각각 84개의 특수 준 난수 구조를 만들어 총 168개의 새로운 구조를 만들었다.

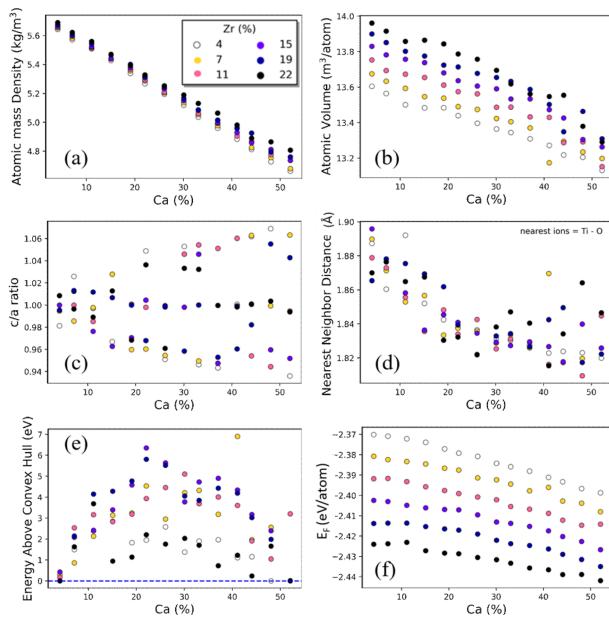
본 계산에 있어 전이금속이 항상 계산에 사용되기 때문에, 밀도범 함수 이론기반의 쿨롱 상호작용 매개변수인 U 포텐셜을 고려한 DFT+U 계산을 통해, 실험 현상에 대한 예측성을 높였다. 계산에 사용된 쿨롱 상호작용 매개변수는 Ti, Zr 원소에 3 eV로 사용하였다.

### 3.2 입방체 계산 물성 결과

먼저 입방체 Ba<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>Ti<sub>1-y</sub>Zr<sub>y</sub>O<sub>3</sub> 구조 최적화를 진행하여 원자 밀도, 원자 부피, 격자상수 비율, 상 안정도, 형성 에너지를 구하였다. Fig. 2에서 (a)와 (b)는 각각 원자 밀도, 원자 부피를 나타내는데 두 결과는 같은 지르코늄(Zr) 조성에서 칼슘(Ca) 조성이



**Fig. 1.** Bulk structure of BaTiO<sub>3</sub> using special quasi-random structures to create a structure in which dopants are randomly mixed.

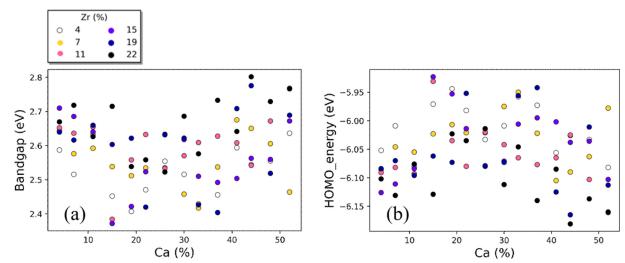


**Fig. 2.** Cubic  $\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ti}_{1-y}\text{Zr}_y\text{O}_3$  physical property data through structural optimization calculations. A graph showing the change in physical properties with respect to the ratio of Ca for each Zr ratio. (a) Atomic mass Density, (b) Atomic Volume, (c) c/a ratio, (d) Nearest Neighbor Distance, (e) Energy Above Convex Hull, and (f) Formation Energy/atom show the physical properties sequentially.

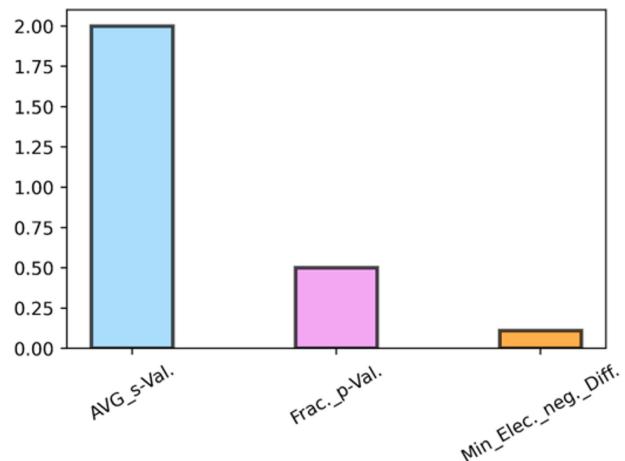
증가할수록 감소하고, 같은 칼슘 조성에서 지르코늄 조성이 감소 할수록 증가한다. 이 결과는 원자 번호 56번인 바륨(Ba) 자리에 원자 번호가 더 작은 20번 칼슘(Ca)을 도핑하여 칼슘의 비율이 증가함에 따라 원자 밀도와 원자 부피가 감소한다. 마찬가지로 원자 번호 22번인 티타늄(Ti)에 40번인 지르코늄(Zr)을 도핑하는 것이기 때문에 지르코늄의 비율이 늘어날수록 원자 밀도와 원자 부피가 증가한다. 격자상수 비율은 (c)에서 지르코늄과 칼슘의 조성에 따라 경향성 확인이 어려운 것을 볼 수 있다. (d)의 그래프는 최근접 원자 거리이며 모든 조성에서 티타늄 원자와 산소(O) 원자가 가장 가까웠으며, 칼슘 조성이 증가할수록 가까워졌다.

상 안정도를 나타낸 (e)의 그래프를 보면 칼슘 조성이 증가함에 따라 증가하여 27개의 바륨에서 6개를 칼슘으로 대체한 22%의 칼슘 비율에서 가장 높게 나왔다. 지르코늄의 경우 티타늄 27개의 자리에서 1개, 6개를 대체한 4%와 22%가 낮은 에너지를 가지게 나왔다. 이는 칼슘의 비율이 20%에서 30% 사이에 상 안정도가 불안정하며 지르코늄은 4%와 22%의 비율일 때 그 사이의 비율을 가진 상보다 상 안정도가 안정하다는 것을 의미 한다. 형성 에너지를 나타낸 (f)그래프를 보면 형성에너지에는 칼슘과 지르코늄 조성이 증가할수록 감소하는 것을 보인다.

구조 최적화 계산 이후 전자구조 최적화를 통하여 밴드갭 (Bandgap)과 HOMO 에너지 물성을 계산하였다. Fig. 3은 전자 구조 최적화를 통하여 얻은 물성으로 Fig. 2의 그래프로 나타내었다. (a)는 밴드갭으로 칼슘 조성이 증가함에 따라 감소하였다



**Fig. 3.** Cubic  $\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ti}_{1-y}\text{Zr}_y\text{O}_3$  physical property data obtained through electronic structure optimization calculation. (a) Bandgap, (b) HOMO energy graphs showing physical properties.

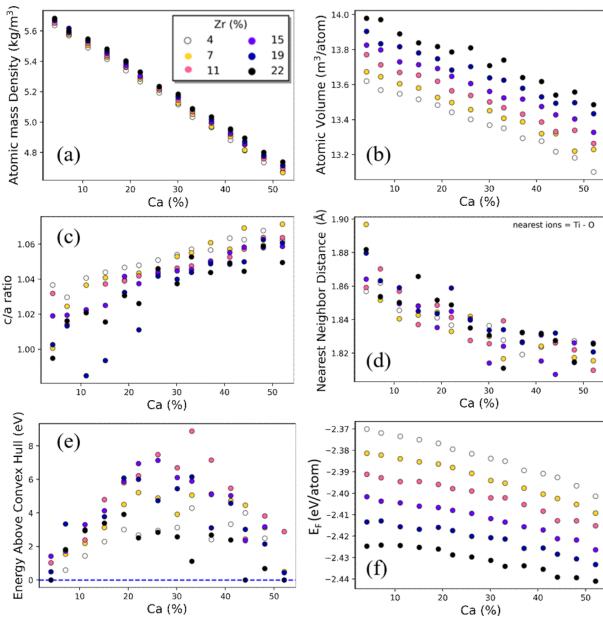


**Fig. 4.** Cubic  $\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ti}_{1-y}\text{Zr}_y\text{O}_3$  physical property data obtained using the database. The physical properties shown from the left are average of s valence electrons, fraction of p valence electrons, and minimum electronegativity difference.

가 증가함을 보여준다.

지르코늄의 경우 대체적으로 비율이 낮을수록 밴드갭이 작고 비율이 높을수록 밴드갭이 큰 것을 보여준다. 칼슘과 지르코늄의 비율을 변경하여 약 2.4eV 크기의 밴드갭에서부터 약 2.8eV의 다양한 밴드갭을 얻을 수 있다. HOMO 에너지를 나타낸 (b) 그래프를 보면 칼슘 조성이 증가함에 따라 HOMO 에너지가 증가하다가 감소한다. 지르코늄 조성은 비율이 증가할수록 낮은 HOMO 에너지 값을 가지는 것을 보인다. s-오비탈 원자가전자 평균 개수, p-오비탈 원자가전자 평균 개수, 최소 전기음성도 차이는 원소별 물성을 pymatgen 데이터베이스를 활용하여 계산하였다[21]. 바륨과 티타늄 자리에 같은 원자가전자를 가지는 칼슘과 지르코늄을 도편트로 대체하였기 때문에 계산한 모든 조성에서 같게 나옴을 Fig. 4에서 보여준다.

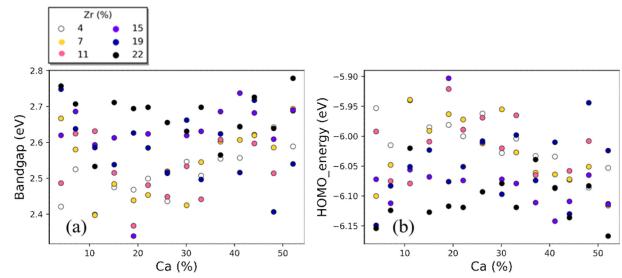
Fig. 4의 그래프의 왼쪽에서부터 차례대로 s-오비탈 원자가전자 평균 개수, p-오비탈 원자가전자 평균 개수, 최소 전기음성도 차이로 모든 조성에서 s-오비탈 원자가전자 평균 개수는 2개, p-오비탈 원자가전자 평균 개수는 0.5개, 최소 전기음성도 차이는 약 0.11로 나옴을 확인하였다.



**Fig. 5.** Tetragonal  $\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ti}_{1-y}\text{Zr}_y\text{O}_3$  physical property data through structural optimization calculations. A graph showing the change in physical properties with respect to the ratio of Ca for each Zr ratio. (a) Atomic mass Density, (b) Atomic Volume, (c) c/a ratio, (d) Nearest Neighbor Distance, (e) Energy Above Convex Hull, (f) Formation Energy/atom show the physical properties sequentially.

### 3.2 정방정계 계산 물성 결과

정방정계 상  $\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ti}_{1-y}\text{Zr}_y\text{O}_3$  조성의 구조 최적화를 진행하여 3.1에서 입방체 계산한 물성과 동일하게 원자 밀도, 원자 부피, 격자상수 비율, 상 안정도, 형성 에너지를 구하였다. Fig. 5에서 (a), (b)는 원자 밀도, 원자 부피이며 입방체와 동일하게 칼슘 조성 비율이 증가할수록 감소하고, 같은 칼슘 조성에서는 지르코늄 조성이 감소할수록 증가한다. (c)의 그래프는 격자상수 비율을 나타내는데 동일한 지르코늄 조성에서 칼슘 조성이 증가할수록 격자상수 비율이 증가하며, 동일한 칼슘 조성에서 지르코늄 조성이 감소함에 따라 격자상수 비율이 증가함을 확인할 수 있다. 입방체의 격자상수 비율은 뚜렷한 경향을 확인하기 어려웠는데 정방정계의 결과는 칼슘의 비율에 따라 증가하는 경향을 띤다. 최근접 원자거리의 경우 (d) 그래프에서 보듯 모든 조성에서 티타늄원자와 산소원자가 가장 가까웠으며, 동일한 지르코늄 조성에서 칼슘 조성이 증가할수록 감소함을 확인 가능하였다. (e) 그래프는 상 안정도로 칼슘 조성이 증가함에 따라 증가하고, 지르코늄의 경우 비율이 4%와 22%가 가장 안정적인 경향을 보인다. 형성에너지 (f) 그래프는 칼슘과 지르코늄 조성이 증가할수록 감소하는 것을 보인다. 최근접 원자거리, 상 안정도, 그리고 형성에너지의 물성 모두 입방체의 물성과 동일한



**Fig. 6.** Tetragonal  $\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ti}_{1-y}\text{Zr}_y\text{O}_3$  physical property data obtained through electronic structure optimization calculation. (a) Bandgap, (b) HOMO energy graphs showing physical properties.

경향성을 보여준다.

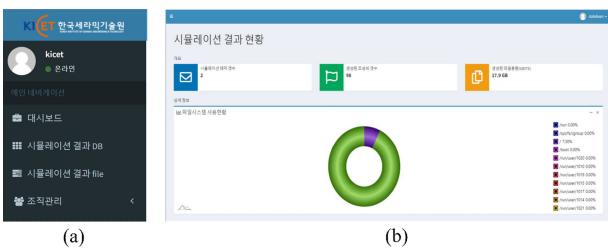
또한 정방정계의  $\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ti}_{1-y}\text{Zr}_y\text{O}_3$ 의 모든 조성에 대해 구조 최적화 이후 전자구조 최적화를 진행하였다. (a)는 밴드갭을 나타낸 그래프이며 칼슘 조성이 증가함에 따라 감소했다가 증가함을 보이고 지르코늄의 경우 비율이 높을수록 큰 밴드갭을 가진다. 입방체와 마찬가지로 정방정계 역시 약 2.4eV 크기의 밴드갭에서 약 2.8eV 크기의 밴드갭까지 다양한 밴드갭을 얻을 수 있었다. HOMO 에너지는 칼슘 조성이 증가함에 따라 감소했다가 증가함을 (b) 그래프에서 보인다. 지르코늄의 조성비율이 증가할수록 낮은 HOMO 에너지를 보이는데 이는 입방체와 동일한 경향성을 나타낸다.

s-오비탈 원자가전자 평균 개수, p-오비탈 원자가전자 평균 개수, 그리고 최소 전기음성도는 Fig. 4의 입방체에서 구한 물성과 동일하게 나온다. 입방체와 정방정계 두 상 모두 총 135개로 원자 개수가 동일하며 원자가전자 개수가 같은 도편트 바륨의 자리에는 칼슘과 티타늄자리에 지르코늄을 대체하였기 때문이다.

### 3.3 데이터 저장 (DB)

본 연구에서 구한 168개의 조성 각각의 원자 밀도, 원자 부피, 격자 상수 비율, 상 안정도, 형성 에너지, 밴드갭, HOMO 에너지, s-오비탈 원자가전자 평균 개수, p-오비탈 원자가전자 평균 개수, 그리고 최소 전기음성도 차이 물성 10가지로 총 1680개의 물성 데이터를 얻었다. 계산으로 얻은 데이터들을 추후 인공지능을 활용한 데이터 기반 솔루션을 제공하기 위하여 물성 탐색을 보다 용이하게 Database(DB)를 만들었다. Fig. 7은 우리가 계산한 데이터를 저장하고 탐색할 수 있는 DB의 모습이다. (a)는 DB 구성 메뉴이며 메뉴에는 대시보드 그림인 (b)와 같이 현재 시뮬레이션 사용현황과 시뮬레이션 테마 개수, 생성된 조성비 개수, 생성된 파일용량을 볼 수 있다.

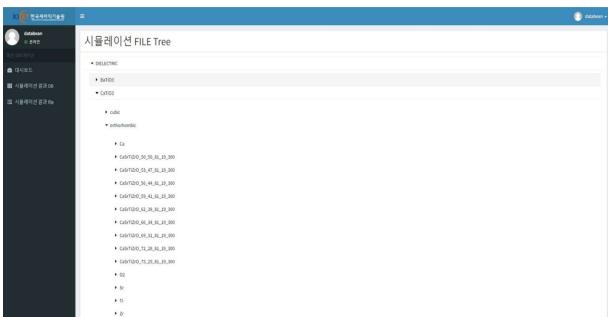
또한, 시뮬레이션 결과 DB메뉴에서 Fig. 8의 (a)의 테마선택으로 유전체(Dielectric)과 고체산화물 연료전지(SOFC, the solid oxide fuel cell)를 선택할 수 있다. 여기서 유전체는 본 연구에서 계산한 MLCC인  $\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ti}_{1-y}\text{Zr}_y\text{O}_3$ 조성이 저장 되어있다. (b)



**Fig. 7.** Database that stores data and facilitates data navigation. (a) DB configuration menu and (b) Dashboard.

|   | 날짜         | 시작 날짜      | 종료 날짜      | 조성 번호                            | density (kg/m³) | volume | Cd, ratio          | e_hull (mm) | e_Pore, (mm) | head_gap (mm) | p_head_center | root_mean_square_e_virial | rate_e_virial | rate_e_chromogenicity | database_registration | HOME_energy          |        |
|---|------------|------------|------------|----------------------------------|-----------------|--------|--------------------|-------------|--------------|---------------|---------------|---------------------------|---------------|-----------------------|-----------------------|----------------------|--------|
| 1 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | DELECTRIC_BaTiO3_40_32_70_20_300 | 4.00752         | 1.2013 | 0.9999999999999999 | 0           | -0.40001     | 0.7002        | -             | 2                         | 0.3           | 0.20000000000000001   | TiO_3BaTiO3000227100  | 0.0756               |        |
| 2 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | DELECTRIC_BaTiO3_32_32_70_20_300 | 4.00753         | 1.3770 | 1.0000000000000001 | 1.00337     | -0.40001     | 0.7200        | -             | 2                         | 0.3           | 0.20000000000000001   | TiO_3BaTiO3000227100  | 0.0800               |        |
| 3 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | DELECTRIC_BaTiO3_36_44_70_20_300 | 4.00754         | 1.5549 | 1.00001            | 1.00381     | -0.40000     | 0.8003        | -             | 2                         | 0.3           | 0.20000000000000001   | TiO_3BaTiO3000227100  | 0.0814               |        |
| 4 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | DELECTRIC_BaTiO3_20_40_70_20_300 | 4.00746         | 1.5476 | 0.9999999999999999 | 1.02405     | -0.40000     | 0.9004        | -             | 2                         | 0.3           | 0.20000000000000001   | TiO_3BaTiO3000227100  | 0.0809               |        |
| 5 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | DELECTRIC_BaTiO3_32_32_70_20_300 | 5.00409         | 1.5621 | 0.9999999999999999 | 1.03621     | 0.70000      | -0.40001      | 0.7200        | -                         | 2             | 0.3                   | 0.20000000000000001   | TiO_3BaTiO3000227100 | 0.0803 |
| 6 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | DELECTRIC_BaTiO3_36_44_70_20_300 | 5.15221         | 1.5344 | 1.00232            | 1.1700      | -0.40000     | 0.5700        | -             | 2                         | 0.3           | 0.20000000000000001   | TiO_3BaTiO3000227100  | 0.0806               |        |
| 7 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | DELECTRIC_BaTiO3_20_40_70_20_300 | 5.16978         | 1.5593 | 1.00331            | 2.0032      | -0.40001     | 0.6000        | -             | 2                         | 0.3           | 0.20000000000000001   | TiO_3BaTiO3000227100  | 0.0808               |        |
| 8 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | DELECTRIC_BaTiO3_24_32_70_20_300 | 5.20548         | 1.5757 | 0.9999999999999999 | 2.75000     | -0.40000     | 0.5500        | -             | 2                         | 0.3           | 0.20000000000000001   | TiO_3BaTiO3000227100  | 0.0801               |        |
| 9 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | 2022-01-22 | DELECTRIC_BaTiO3_70_22_70_20_300 | 5.32007         | 1.5797 | 1.00402            | 2.20007     | -0.40001     | 0.5500        | -             | 2                         | 0.3           | 0.20000000000000001   | TiO_3BaTiO3000227100  | 0.0809               |        |

**Fig. 8.** Simulation result DB inquiry screen. (a) Simulation result DB theme selection and (b) DB search results.



**Fig. 9.** View simulation result file in tree format.

의 그림은 테마선택 후 각 조성에 대한 물성 정보를 볼 수 있는 데이터시트가 나온다. Search 창을 이용하여 원하는 조성이나 물성을 검색하여 찾아볼 수 있다.

Fig. 9는 Fig. 7의 (a) 구성 메뉴에서 시뮬레이션 결과 file을 선택한 화면이다. 이 메뉴 화면에서 우리가 계산한 데이터의 파일 Tree를 확인할 수 있으며 템색에 용이하기 위하여 도편트를 추가하지 않은 원래의 조성의 물질 풀더에서 결정계를 찾고 원하는 조성을 찾을 수 있는 형식으로 만들었다. 각 조성 풀더에는 우리가 계산에 사용한 파일과 계산을 통하여 얻어낸 물성 파일들을 확인할 수 있다.

## 4. 결 론

본 연구에서는 입방체, 정방정계 BaTiO<sub>3</sub>기반의 다성분계를 SQS를 통하여 랜덤 합금 시스템을 제작하였다. 랜덤 합금에 사용한 원소는 바륨 자리에 칼슘, 티타늄 자리에 지르코늄을 사용하였다. 제작된 물질을 제일원리계산을 통하여 기본 결정구조 정보, 열역학 데이터, 그리고 전자 구조의 물리적 특성을 분석하였다. 입방체와 정방정계 두 결정계의 원자 밀도, 원자 부피, 최근접 원자 거리, 상 안정성, 그리고 형성 에너지는 비슷한 경향성을 나타냈다. 격자상수 비율의 경우 두 결정계에서 다른 경향성이 나타났는데 입방체의 경우 격자상수 비율의 경향성이 뚜렷하게 나타나지 않는 반면 정방정계에서는 칼슘과 지르코늄의 비율에 따라 증가, 감소의 경향성을 확인하였다. 우리의 연구로 총 168개의 새로운 구조에 대해 1680개의 물성데이터를 모았고, 이를 관리하기 위한 통합 데이터베이스를 구축하였다. 데이터베이스를 통해 AI 모델링과 결합된 데이터 분석을 수행하는 빅데이터 솔루션을 제공할 수 있을 것이다. 이것으로 재료 개발 프로세스의 데이터화와 지능화를 통해 디지털 전환을 실현함으로써 글로벌 재료 시장을 선도할 것으로 기대된다.

## 감사의 글

본 연구는 산업통상자원부의 가상공학플랫폼 구축사업(P0022336)의 지원을 통해 수행되었습니다.

## REFERENCES

- [1] H. Jaffe, "Titanate Ceramics for Electromechanical Purposes", *Ind. Eng. Chem.*, Vol. 42, No. 2, pp. 264-268, 1950.
- [2] G.-J. Lee, H.-P. Kim, S.-G. Lee, H.-Y. Lee, and W. Jo, "Depolarization Mechanism of Alternating-current-poled Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub> Single Crystals Measured using in-situ thermally Stimulated Depolarization Current", *Sens. Sci. Technol.*, Vol. 29, No. 1, p. 4, 2020.
- [3] J.-H. Lee, G.-J. Lee, T.-L. Pham, J.-S. Lee, and W. Jo, "Suppression of Dielectric Loss at High Temperature in (Bi<sub>1/2</sub>Na<sub>1/2</sub>)TiO<sub>3</sub> Ceramic by Controlling A-site Cation Deficiency and Heat Treatment", *Sens. Sci. Technol.*, Vol. 29, No. 1, p. 7, 2020.
- [4] H. Kishi, N. Kohzu, Y. Iguchi, J. Sugino, M. Kato, H. Ohsato, and T. Okuda, "Occupational sites and dielectric properties of rare-earth and Mn substituted BaTiO<sub>3</sub>", *J. Eur. Ceram. Soc.*, Vol. 21, No. 1, pp. 1643-1647, 2001.
- [5] S. Kobayashi, K. Inoue, T. Kato, Y. Ikuhara, and T. Yamamoto, "Multiphase nanodomains in a strained BaTiO<sub>3</sub> film on a GdScO<sub>3</sub> substrate", *J. Appl. Phys.*, Vol. 123, No. 6, p. 064102, 2018.
- [6] B. S. Kar, M. N. Goswami, and P. C. Jana, "Effects of lan-

- thanum dopants on dielectric and multiferroic properties of BiFeO<sub>3</sub>-BaTiO<sub>3</sub> ceramics”, *J. Alloys Compd.*, Vol. 861, p. 157960, 2021.
- [7] Y. Yao, C. Zhou, D. Lv, D. Wang, H. Wu, Y. Yang, and X. Ren, “Large piezoelectricity and dielectric permittivity in BaTiO<sub>3</sub>-xBaSnO<sub>3</sub> system: The role of phase coexisting”, *EPL*, Vol. 98, No. 2, p. 27008, 2012.
- [8] M. H. Zhao, D. A. Bonnell, and J. M. Vohs, “Effect of ferroelectric polarization on the adsorption and reaction of ethanol on BaTiO<sub>3</sub>”, *Surf. Sci.*, Vol. 602, No. 17, pp. 2849-2855, 2008.
- [9] S. Piskunov, E. Heifets, R. I. Eglitis, and G. Borstel, “Bulk properties and electronic structure of SrTiO<sub>3</sub>, BaTiO<sub>3</sub>, PbTiO<sub>3</sub> perovskites: an ab initio HF/DFT study”, *Comput. Mater. Sci.*, Vol. 29, No. 2, pp. 165-178, 2004.
- [10] F. Maldonado and A. Stashans, “DFT study of Ag and La codoped BaTiO<sub>3</sub>”, *J. Phys. Chem. Sol.*, Vol. 102, pp. 136-141, 2017.
- [11] M. Rizwan, Hajra, I. Zeba, M. Shakil, S. S. A. Gillani, and Z. Usman, “Electronic, structural and optical properties of BaTiO<sub>3</sub> doped with lanthanum (La): Insight from DFT calculation”, *Optik.*, Vol. 211, p. 164611, 2020.
- [12] G. Kresse and J. Furthmüller, “Efficient iterative schemes for ab initio total-energy calculations using a plane-wave basis set”, *Phys. Rev. B.*, Vol. 54, No. 16, pp. 11169-11186, 1996.
- [13] P. E. Blöchl, “Projector augmented-wave method”, *Phys. Rev. B.*, Vol. 50, No. 24, pp. 17953-17979, 1994.
- [14] M. R. Panigrahi, and S. Panigrahi, “Synthesis and microstructure of Ca-doped BaTiO<sub>3</sub> ceramics prepared by high-energy ball-milling”, *Phys. B: Condensed Matter*, Vol. 404, No. 21, pp. 4267-4272, 2009.
- [15] J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, “Generalized Gradient Approximation Made Simple”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 77, No. 18, pp. 3865-3868, 1996.
- [16] V. I. Anisimov, J. Zaanen, and O. K. Andersen, “Band theory and Mott insulators: Hubbard U instead of Stoner I”, *Phys. Rev. B*, Vol. 44, No. 3, pp. 943-954, 1991.
- [17] A. Zunger, S. H. Wei, L. G. Ferreira, and J. E. Bernard, “Special quasirandom structures”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 65, No. 3, pp. 353-356, 1990.
- [18] A. van de Walle, P. Tiwary, M. de Jong, D. L. Olmsted, M. Asta, A. Dick, D. Shin, Y. Wang, L. Q. Chen and Z. K. Liu, “Efficient stochastic generation of special quasirandom structures”, *Calphad*, Vol. 42, pp. 13-18, 2013.
- [19] C. Kim, G. Pilania, and R. Ramprasad, “From Organized High-Throughput Data to Phenomenological Theory using Machine Learning: The Example of Dielectric Breakdown”, *Chem. Mater.*, Vol. 28, No. 5, pp. 1304-1311, 2016.
- [20] A. Takahashi, Y. Kumagai, J. Miyamoto, Y. Mochizuki, and F. Oba, “Machine learning models for predicting the dielectric constants of oxides based on high-throughput first-principles calculations”, *Phys. Rev. Mater.*, Vol. 4, No. 10, p. 103801, 2020.
- [21] S. P. Ong, W. D. Richards, A. Jain, G. Hautier, M. Kocher, S. Cholia, D. Gunter, V. L. Chevrier, K. A. Persson and G. Ceder, “Python Materials Genomics (pymatgen): A robust, open-source python library for materials analysis”, *Comput. Mater. Sci.*, Vol. 68, pp. 314-319, 2013.