



# 기계 학습 기반 흡착에너지 예측을 통한 암모니아 분해용 합금 촉매 탐색

여병철<sup>1,\*</sup> · 정소윤<sup>1</sup> · 김준수<sup>1</sup> · 김동훈<sup>2</sup>

<sup>1</sup>국립부경대학교 에너지자원공학과

<sup>2</sup>한국과학기술연구원 계산과학연구센터

## Discovery of Alloy Catalysts for Ammonia Decomposition by Machine Learning-Based Prediction of Adsorption Energies

Byung Chul Yeo<sup>1,\*</sup>, So Yun Jeong<sup>1</sup>, Jun Su Kim<sup>1</sup>, and Donghun Kim<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Department of Energy Resources Engineering, Pukyong National University, Busan 48513, Republic of Korea

<sup>2</sup>Computational Science Research Center, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 02792, Republic of Korea

**Abstract:** Ammonia decomposition has gained significant attention as an eco-friendly method for hydrogen production because it creates no carbon dioxide emissions. While Ru catalysts are known for their high activity in ammonia decomposition, their high cost makes them uneconomical for commercial use. Therefore, it is essential to explore novel alloy catalysts composed of inexpensive elements with high catalytic performance. Nitrogen adsorption energies serve as key descriptors indicating the catalytic performance for ammonia decomposition, and first-principle calculations can compute these energies. However, the screening of numerous alloy catalyst candidates through extensive first-principle calculations and experimental validations remains time-consuming due to the vast number of potential candidates. To address this, artificial intelligence and machine learning models are being developed to quickly predict catalyst performance, efficiently searching for promising catalyst candidates. In this study, we developed a machine-learning-based method to rapidly predict nitrogen adsorption energies using a graph-based artificial neural network, thereby efficiently searching for novel catalysts for ammonia decomposition. Our training dataset included the nitrogen adsorption energies of 30 pure transition metal catalyst candidates, as well as binary alloy catalyst candidates, including core-shell and intermetallic compounds. As a result, we successfully identified 12 catalyst candidates composed of inexpensive elements that are likely to exhibit catalytic performance comparable to Ru catalysts.

(Received 30 July, 2024; Accepted 4 September, 2024)

**Keywords:** ammonia decomposition, catalyst, machine learning, adsorption energy, screening

## 1. 서 론

암모니아 분해 반응은 친환경적으로 에너지를 생산할 수 있는 핵심 기술 중 하나로 주목받고 있다[1]. 암모니아 분해는 질소와 수소로만 이루어져 있어서 암모니아가 분해될 때 이산화탄소와 같은 온실가스가 배출되지 않고 수소를 생산할 수 있다[2]. 이를 통해 생성된 수소는 청정 에너지의 원료로 활용될 수 있고, 수소 경제에 기여할 수 있는

잠재력을 가지고 있다[3,4]. 궁극적으로 암모니아 분해 기술은 화석 연료에 대한 의존도를 줄이고, 친환경 미래 에너지의 수요를 충족시키는데 기여할 수 있다[5]. 그러나 암모니아 분해 기술을 발전시키기 위해서는 반응을 촉진시키는 촉매가 필수적이다[6].

암모니아를 열화학적으로 분해하려면 흡열 반응이기 때문에 고온 환경을 유지해야 한다[5]. 이 반응에서 필요한 에너지 소비를 줄이기 위해서는 낮은 온도 조건에서도 암모니아 분해 반응을 활성화할 수 있는 촉매가 필요하다[6]. 대부분의 암모니아 분해 촉매는 전이 금속이나 그들의 화합물로 구성되어 있다[7,8]. 현재 가장 잘 알려져 있는 암

- 여병철: 부교수, 정소윤: 학사과정, 김준수: 학사과정, 김동훈: 선임연구원

\*Corresponding Author: Byung Chul Yeo

[Tel: +82-51-629-6558, E-mail: byeo@pknu.ac.kr]

Copyright © The Korean Institute of Metals and Materials

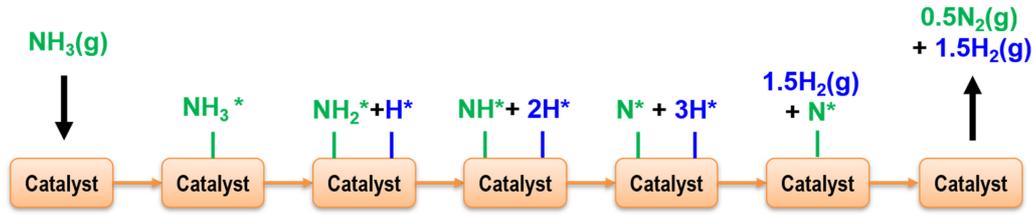


Fig. 1. Schematic diagram for reaction pathway of ammonia decomposition catalysts.

모니아 분해 촉매는 단일 금속으로 이루어진 Ru 촉매이다 [6]. 그러나 Ru은 귀금속에 속하여 값이 가격이 매우 비싸서 암모니아 분해 촉매로 사용할 경우 경제성이 크게 떨어진다[9]. 따라서 Ru을 대체할 수 있는 값싸고 고성능의 암모니아 분해 촉매를 탐색하는 일이 매우 중요해지고 있다.

암모니아 분해용 촉매를 탐색하기 위한 후보군은 단일 금속이 아닌 여러 개의 전이 금속 원소로 이루어진 합금이 될 수 있다[10]. 따라서, 유망한 촉매를 식별하기 위해서는 모든 후보 촉매의 성능을 측정하고 비교하는 과정이 필요하다. 그러나 기존의 촉매 탐색 방법은 수많은 시행착오를 겪기 때문에 시간이 매우 오래 걸리고 경제적인 비용이 상당히 발생한다. 이를 극복하기 위해 양자역학 기반의 시뮬레이션을 통해 촉매 후보군의 성능을 예측하는 방법이 등장하였다[11]. 선행연구에 따르면, 촉매 표면에서의 질소와의 흡착에너지와 촉매 활성화 사이에는 상관관계가 있다고 알려져 있다[12]. 실험적으로 촉매 활성도를 측정하는 대신, 촉매의 흡착에너지를 계산하는 것이 상대적으로 효율적이기 때문에 이를 활용하여 촉매를 탐색하는 데 이용되었다. 그러나, 탐색할 후보군의 수가 많아지고 구조가 다양해질수록 컴퓨터 자원의 한계로 인해 촉매 탐색에 소요되는 시간과 비용이 기하급수적으로 증가한다[13]. 이러한 문제를 해결하기 위해 최근에는 인공지능 및 기계 학습 기반의 신기술이 적극적으로 도입되고 있다[14-17].

현재 유망한 촉매 후보군을 효율적으로 탐색하기 위해 촉매 성능을 빠르게 예측할 수 있는 인공지능 또는 기계 학습 기술이 개발되고 있다[18-23]. 특히, 촉매 반응에 대한 촉매 소재 구조와 물성 데이터를 대량으로 입력하여 구조와 물성 간의 상관관계를 찾아내는 기계 학습 모델들이 많이 개발되고 있다[18-23]. 이러한 기계 학습 기술은 기존의 시행착오 기반의 계산과학적 혹은 실험적 방법보다 더 빠르고 효율적으로 촉매 후보군을 탐색할 수 있다. 그러나, 개발된 촉매 탐색을 위한 기계 학습 모델은 제일원리계산 결과를 기반으로 한 데이터를 입력해야 하기 때문에 입력 데이터 준비에 많은 시간이 소요된다[24]. 따라서 제일원리계산을 통해 얻어진 데이터 보다 간단하고 쉽게 준비할

수 있는 입력 데이터만으로 흡착에너지를 예측할 수 있는 기계 학습 모델이 필요하다. 실제로 이전 연구에서는 주기율표의 정보를 사용하여 흡착에너지를 예측하는 그래프 기반 인공신경망 모델이 개발된 사례가 있다[24,25].

본 연구에서는 암모니아를 분해하는 촉매를 효율적으로 탐색하기 위해 그래프 기반 인공신경망을 활용하여 촉매 성능을 예측할 수 있는 질소의 흡착에너지를 빠르게 예측하는 머신러닝 모델을 개발하였다. 특히, 30개의 전이 금속 원소로 이루어진 단일 금속 촉매뿐만 아니라 코어-셸(Core-shell)과 금속간 화합물(Intermetallic)로 이루어진 이종 합금 촉매 후보군에 대한 질소의 흡착에너지를 계산하여 기계 학습 모델의 학습데이터로 사용하였다. 이를 바탕으로, Ru 촉매와 유사한 질소 흡착에너지를 가지면서도 가격이 저렴하고 희소 금속이 아닌 원소로 구성된 이종 합금 촉매 후보 소재 12개를 성공적으로 탐색하였다. 비록 탐색된 유망한 12개 촉매 후보 소재에 대한 실험적인 검증은 수행하지 않았지만, CoNi와 NiFe는 이미 실험적으로 높은 암모니아 분해 반응 활성을 보고한 논문이 있어, 이들 촉매 후보 소재의 우수한 성능이 실제로 나타날 가능성을 엿볼 수 있었다.

## 2. 실험 방법

### 2.1 암모니아 분해 반응

암모니아 분해용 촉매에 대한 반응 메커니즘은 암모니아 합성 반응 경로의 역방향을 바탕으로 영감을 받아 많은 연구가 진행되었다[26]. 그림 1은 현재까지 잘 알려진 암모니아 분해 반응 경로를 나타내며, 암모니아 분해를 위한 촉매 표면 위에서의 중간 생성물의 흡착 및 탈착 과정의 변화를 보여준다.

아직 논란의 여지가 남아있지만, 단일 금속 촉매에 대한 암모니아 분해 반응의 속도 결정 단계는 촉매 종류에 따라 2가지로 나눌 수 있다[6]. Fe, Co, Ni 등으로 이루어진 촉매의 경우 속도 결정 단계는 질소(Nitrogen; N으로 표기)의 재결합 및 탈착 과정이 되며, Rh, Ir, Pd 등으로 이루

**Table 1.** Comparison of the experimental catalytic performance and N adsorption energies for ammonia decomposition of 6 representative catalysts with pure metal[27]

Catalyst	TOF(s <sup>-1</sup> )	TOF/Ru TOF	$\Delta E_N$ (eV)	$ \Delta E_N - \Delta E_N[\text{Ru}] $
Ru	6.85	1	-0.820	0
Ni	4.21	0.61	-0.076	0.744
Fe	0.327	0.048	-1.605	0.785
Pt	0.0226	0.0033	0.386	1.206
Pd	0.0194	0.0028	0.546	1.366
Cu	0.0130	0.0019	1.426	2.246

어진 촉매의 경우 속도 결정 단계는 N-H의 결합의 분리 과정이 된다[27]. 촉매 성능을 이론적으로 예측하기 위해서는 속도 결정 단계의 중간 생성물에 대한 활성화 에너지 (Activation energy)를 알아야만 한다[28]. 이때, 제일원리계산을 통해 활성화 에너지를 계산할 수 있지만, 분석해야 할 촉매 후보군과 중간 생성물의 개수가 많아질 수록 높은 시간적 및 경제적 비용이 발생한다[29]. 따라서, 암모니아 분해용 촉매를 효율적으로 탐색하기 위해서는 촉매 활성도와 강한 상관관계를 가지면서도 단순하게 표현될 수 있는 기술자(Descriptor)가 필요하다[30].

현재까지 촉매 이론 분야에서 잘 알려진 Scaling relation과 Brønsted-Evans-Polanyi(BEP) relationship에 따르면, 암모니아 분해용 촉매의 속도 결정 단계에 속하는 중간 생성물인 질소 원자 또는  $\text{NH}_x$  분자의 활성화 에너지는 궁극적으로 촉매 표면과 질소 사이의 흡착에너지와 상관관계가 있을 수 있다[30,31]. 또한, J. C. Ganley et al. 연구에서는 단일 금속 촉매에 대한 분석이지만, 실험적으로 측정된 촉매 활성도와 질소 흡착에너지 사이에 화산 모양의 상관관계(Volcano-type relationship)가 나타남을 보였다[27]. 따라서, 암모니아 분해용 단일 촉매 및 합금 촉매의 활성도를 평가할 때, 촉매 표면 위의 질소 흡착에너지를 Descriptor로 사용할 수 있다[27,32]. 본 연구에서는 암모니아 분해용 촉매 후보군의 촉매 활성도를 비교하기 위해, 질소의 흡착에너지를 제일원리계산 방법과 기계 학습 모델을 통해 계산하였다.

## 2.2 DFT 계산 및 촉매 데이터 수집

암모니아 분해용 촉매의 질소 흡착에너지를 계산하기 위해서 밀도범함수이론 계산(Density functional theory; DFT) 계산을 수행하였다. 이때, projector-augmented-wave pseudopotentials (PAW)와 revised Perdew-Burke-Ernzerhof (RPBE)를 exchange-correlation으로 채택한 Vienna Ab initio Simulation Package (VASP)을 사용하였다[33-35].

평면파(Plane wave)의 a kinetic energy cutoff 를 520 eV로 설정하였고,  $6 \times 6 \times 1$ 의 Monkhost-Pack k-grid mesh를 사용하여 계산하였다[36]. 촉매 표면의 흡착에너지 계산을 위한 slab 구조는 촉매의 단위 셀(Unit cell)의  $2 \times 2$ 로 확장하여 4개의 층으로 구성하도록 만들었다. 흡착에너지를 정교하게 계산하기 위해 van der Waals interactions을 고려한 Grimme's DFT-D3 방법도 적용하였다[37]. 흡착에너지의 계산 방법은 아래 식을 따른다.

$$\Delta E_{ads} = E[\text{slab+ads.}] - E[\text{slab}] - E[\text{slab}] \quad (1)$$

$\Delta E_{ads}$ : 흡착에너지

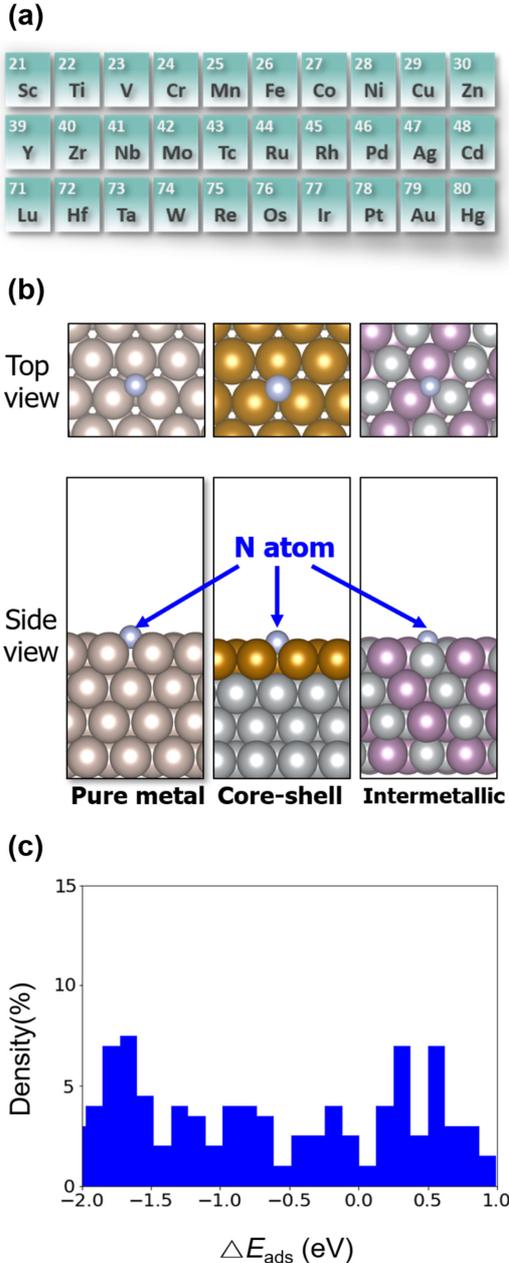
$E[\text{slab+ads.}]$ : 촉매 표면과 흡착물의 시스템 전체 에너지

$E[\text{slab}]$ : 촉매 표면의 시스템 전체 에너지

$E[\text{ads.}]$ : 흡착물의 시스템 전체 에너지

암모니아 분해용 촉매의 성능을 실제로 평가하기 위해서는 일반적으로 촉매가 암모니아를 수소로 전환시키는 성능 지표인 전환효율(Turnover frequency; TOF)를 측정하여 비교한다[27]. J. C. Ganley et al.의 연구에서는 동일한 지지체 위에 놓인 단일 금속 촉매의 TOF값을 측정된 결과가 기록되어 있다[27]. 이 연구에서 Ru 촉매가 상대적으로 가장 높은 TOF값을 나타내는 것을 확인할 수 있었다[27]. 이를 바탕으로 우리는 Ru를 포함한 6개의 단일 금속 촉매의 질소 흡착에너지를 계산하고, 실험적으로 측정된 TOF값의 경향성을 비교하였다. 그 결과, 표 1에 나타난 바와 같이 Ru의 TOF값과 해당 촉매의 TOF 값의 비율, 그리고 Ru의 질소 흡착에너지와 해당 촉매의 질소 흡착에너지의 차이에 대한 절대값의 경향성이 일치함을 확인하였다. 본 연구에서는 이를 확장하여 단일 금속뿐만 아니라 이중 합금에 대한 촉매의 성능을 예측하기 위해 해당 촉매의 질소 흡착에너지를 계산하고, Ru에 대한 질소 흡착에너지\*의 차이의 절대값( $|\Delta E_N - \Delta E_N[\text{Ru}]|$ )을 사용했다.

단일 금속으로 이루어진 암모니아 분해용 촉매 중에서



**Fig. 2.** Database for exploring ammonia decomposition catalysts. (a) Target elements in the periodic table (Group: 3~12, Period: 4~6). (b) Adsorption configurations for a nitrogen atom on the 3 representative catalyst's surfaces. (c) Histogram of core-shell and intermetallic alloys for 314 samples.

Ru 촉매가 가장 높은 성능을 보이지만, 귀금속에 속하여 가격이 매우 비싸서 상용화할 경우 경제성이 나쁜 단점을 가지고 있다. 그래서 단일 금속을 넘어 성능과 경제성을 모두 고려한 이중 합금 촉매를 탐색하는 것이 필요하다. 본 연구에서는 이중 합금 중 대표적인 구조인 코어-셸(Core-shell)과 금속간 화합물(Intermetallic)을 암모니아 분

해용 촉매 탐색을 위한 후보군으로 설정하였다. 촉매를 구성하는 원소는 그림 2(a)에 나타난 30개의 전이 금속을 선택하였다. 그림 2(b)는 암모니아 분해용 촉매 탐색을 위해 설정한 단일 금속, 코어-셸, 금속간 화합물에 대해 질소 원자가 촉매 표면에 흡착한 구조를 보여준다. 촉매 표면에서 질소가 흡착한 자리는 Top, Bridge, Hollow 중에서 가장 안정한 흡착 자리만을 고려하였다. 코어-셸 촉매의 안정성을 고려하기 위해 코어와 셸 부분을 구성하는 원소의 격자상수(Lattice constant) 비율이 5% 미만인 합금을 선별하여 사용하였고, 금속간 화합물 촉매의 안정성을 고려하기 위해 형성 에너지(Formation energy)가 0.1 eV 보다 작은 합금에 대해서 선별하여 사용하였다[24].

우리는 직접 DFT 계산을 하여 단일 금속 촉매와 이중 합금 촉매 후보군의 질소 흡착에너지를 촉매 데이터로 얻었다. 이때, 기계 학습 모델을 통해 질소의 흡착에너지를 예측할 촉매 후보군을 남겨두기 위해, 촉매의 안정성을 고려한 이중 합금 촉매 후보군 총 435개 중 임의로 약 70%에 해당하는 314개의 촉매 데이터를 수집하였다. 우리가 직접 DFT 계산하여 수집한 단일 금속 촉매 데이터는 각각 145개와 169개이다. 그림 2(c)는 수집한 촉매 데이터 중에 N의 흡착에너지 값에 대한 분포를 나타낸다. 수집한 촉매 데이터의 질소 흡착된 촉매 표면 구조 정보와 질소 흡착에너지 값은 모두 기계 학습 모델의 학습 데이터로 사용되었다. 사실 촉매 안정성을 고려한 이중 합금 촉매 후보군 중 수집하지 못한 약 30 %에 해당하는 121개의 촉매 데이터에 대해서 직접 DFT 계산을 할 수 있지만, 촉매 표면 위에 질소가 흡착한 자리에 대한 경우의 수와 흡착에너지 계산을 위해 촉매 표면 위에 질소가 없는 시스템에 대한 경우의 수를 모두 고려하면 추가적으로 약 700개 이상의 많은 계산 횟수가 요구된다. 따라서, 직접 DFT 계산하지 않은 나머지 이중 합금 촉매 후보군에 대해서는 학습한 기계 학습 모델을 통해 예측하였다.

### 2.3 기계 학습 모델 개발 및 최적화

DFT 계산을 통해 촉매 성능을 예측하는 방법은 탐색해야 할 후보군의 수가 증가함에 따라 소요되는 시간이 비례하여 증가한다. 이를 가속화하기 위해 이미 개발된 암모니아 분해용 흡착에너지 예측을 위한 기계 학습 모델이 있지만, 이러한 모델에도 한계가 있다[24]. 기계 학습 모델을 학습하기 위해서는 d-band center와 같은 제일 원리 계산에서 얻어진 정보를 준비해야 하므로 추가적인 DFT 계산 시간이 소요된다[24]. 따라서, 우리는 그래프 기반 인공 신

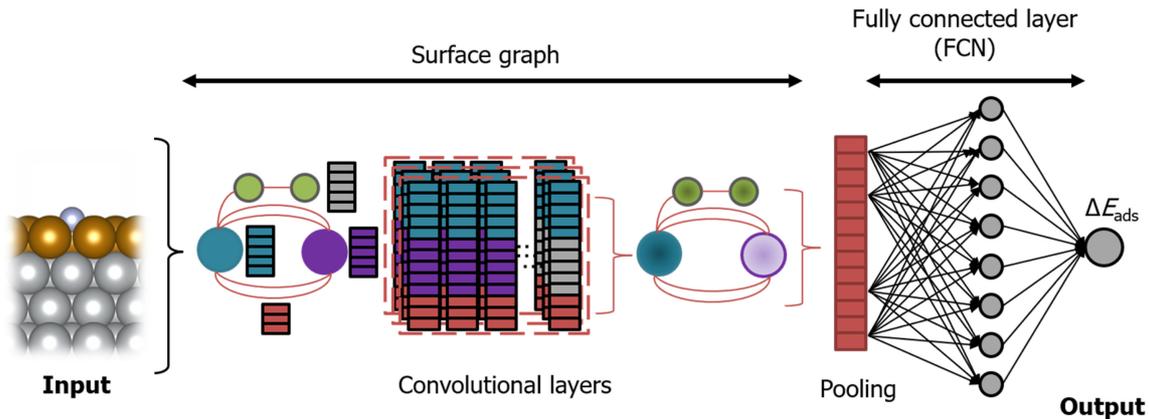


Fig. 3. Schematic diagram of the main architecture of the revised SGCNN model.

Table 2. Specification of our machine learning model’s architecture

Type	Specification
The number of convolution layers	3
The number of convolution filter(kernel)	1
The number of fully-connected layers	3
Activation function	Exponential linear unit(ELU) function
Learning rate	0.005
Dropout probability	0.5
L <sup>2</sup> regularization coefficient	10 <sup>-2</sup>
Batch size	64
Epoch	500
Standard deviation of initial weights	0.1

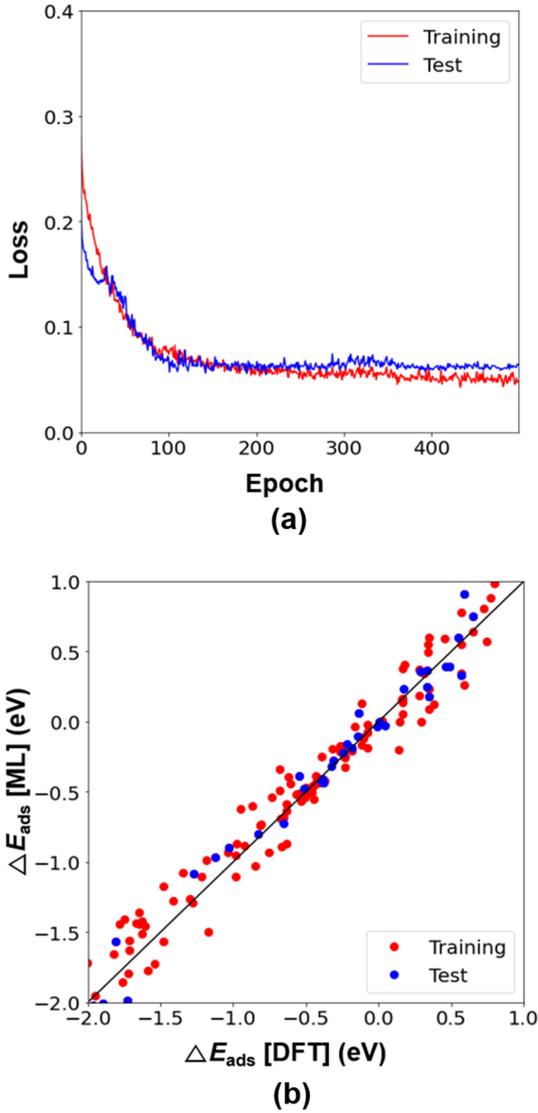
경망을 활용하여 이러한 문제를 해결하기로 하였다. 사실, 전기화학 기반의 암모니아 합성을 위한 질소 환원 반응에서의 흡착에너지 예측용 기계 학습 모델인 Slab Graph Convolutional Neural Network (SGCNN)이 개발된 바 있다[24]. 그림 3은 본 연구에서 기존 SGCNN 모델 구조를 수정한 모델의 구조를 나타낸다. 표 2는 우리가 수정한 SGCNN 모델 구조에 대한 기본 정보를 나타낸다. 자세히 살펴보면, bulk 구조를 학습하는 부분을 제외하고 surface 구조만을 학습하도록 모델을 변경하여 파라미터 수를 줄이고 효율성을 높였다. 또한, 전기화학 기반의 암모니아 합성을 위한 촉매 탐색용 모델을 학습하기 위해 사용된 데이터베이스에는 질소에 대한 흡착에너지 정보가 없었기 때문에, 본 연구에서는 우리가 직접 DFT 계산하여 수집한 질소의 흡착에너지 값을 사용하여 암모니아 분해용 촉매 탐색 기계 학습 모델을 재학습 및 최적화하였다. 이때, 모델의 입력 데이터는 촉매 표면 위에 질소 원자가 흡착된 구조이고,

출력 데이터는 해당 촉매 표면에 대한 질소 흡착에너지 값이다.

### 3. 결과 및 고찰

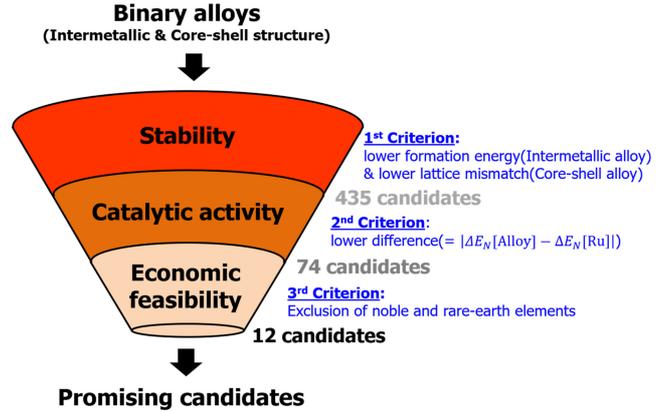
본 연구에서 수집한 단일 및 이중 합금 촉매 표면에 대한 질소 흡착에너지 데이터를 학습한 기계 학습 모델의 성능을 확인하였다. 이전에 개발된 많은 기계 학습 모델의 성능 지표로 평균 절대 오차(Mean Absolute Error; MAE)를 계산하여 보고했기 때문에, 우리도 기계 학습의 성능을 보여주기 위해 MAE를 계산하였다. 우리는 총 데이터 중에서 80%의 데이터를 임의로 선별하여 학습하였고, 나머지 20%의 데이터에 대해 테스트를 하였으며, 이러한 방식을 5-겹 교차 검증(5-fold cross-validation)이라고 한다. 그림 4(a)는 5-겹 교차 검증 후 가장 성능이 좋았던 경우에 대한 학습 데이터와 테스트 데이터의 손실 함수(Loss function) 값을 비교한 결과를 나타낸다. 그 결과, 기계 학습 모델을 사용했을 때 자주 발생하는 과적합(Overfitting) 문제는 거의 발견되지 않았다. 그림 4(b)는 DFT 계산을 통해 얻어진 값과 모델을 통해 예측한 값을 비교한 결과를 나타낸다. 그 결과, 개발한 기계 학습 모델의 정확성은 매우 우수하였고, MAE 값은 0.188 eV로 계산되었다.

우리는 개발한 기계 학습 모델을 활용하여 고성능 및 저비용의 암모니아 분해용 이중 합금 촉매 후보군을 탐색해 보았다. 우리는 그림 5와 같이 암모니아 분해용 촉매 탐색을 위한 스크리닝 기술에 세 가지 조건을 설정하였다. 첫 번째 조건은 촉매의 안정성을 고려하여 각각의 코어-셸 및 금속 간 화합물 중 안정성이 높은 이중 합금을 스크리닝하는 것이다. 기계 학습 모델의 학습 데이터로 수집하지 못한 촉매 후보군을 포함하면, 촉매의 안정성을 고려한 이중



**Fig. 4.** Performances of machine learning model of predicting adsorption energies. (a) Evolution of loss function with increasing training/test steps. (b) Comparing the predicted adsorption energies of training/test dataset using the machine learning(ML) model and DFT calculation.

합금 촉매 후보군의 개수는 435개가 된다. 두 번째 조건은 촉매의 안정성이 좋은 이중 합금 촉매의 질소 흡착에너지 값을 기계 학습을 통해 예측한 후, DFT 계산을 통해 얻어진 Ru 촉매의 질소 흡착에너지와의 차이의 절대값이 0.744 eV보다 작은 후보군을 스크리닝하는 것이다. 이때 스크리닝 조건의 기준은 실험적으로 두 번째로 촉매 성능이 좋은 단일 금속 촉매인 Ni 촉매의 질소 흡착에너지와 Ru 촉매의 질소 흡착에너지와의 차이의 절대값(=0.744 eV, 표 1 참고)으로 정하였으며, 이 조건을 만족하는 촉매 후보군의 개수는 74개가 된다. 세 번째 조건은 추출된 촉매



**Fig. 5.** Schematic diagram of the screening process for high-performing and cost-effective ammonia decomposition catalysts

후보군에 속한 원소 중 귀금속(Ru, Rh, Os, Pd, Ir, Pt) 또는 희소금속(Re, Tc)을 포함하면 제외시키는 것이다. 그 결과, 경제적 실현 가능성 조건을 만족하는 12개의 촉매 후보군이 선별되었다.

표 3은 촉매 탐색용 스크리닝 기술을 통해 추출된 12개의 촉매 후보군에 대한 질소 흡착에너지와 Ru 촉매에 대한 질소 흡착에너지의 차이의 절대값, 해당 원소의 현재 가격을 조사한 후, 1:1의 조성을 가정하여 평균 가격을 나타냈다. 이때 기계 학습을 통해 예측한 질소 흡착에너지와 Ru 촉매에 대한 질소 흡착에너지가 가까운 촉매 후보군을 상위에 나열하였다. 또한, 기계 학습 모델의 예측 결과를 검증하기 위해 DFT 계산을 얻은 질소 흡착 에너지를 비교하였다. 그런데 추출된 12개의 촉매 후보군 중, 기존 학습 데이터에 포함되지 않은 새로운 촉매 후보군 3개가 있었고, 이들에 대해서는 추가로 DFT 계산을 수행하였다. 그 결과, 기계 학습 모델이 예측한 질소 흡착 에너지와 DFT 계산을 얻은 값이 거의 일치하는 것을 확인하였으며, 촉매 성능에 대한 스크리닝 조건의 경향성도 유사함을 확인하였다. 대다수의 암모니아 분해용 촉매 후보군 중에서 실험적으로 암모니아 분해용 단일 금속 촉매 활성도가 두 번째와 세 번째로 높은 금속 원소인 Ni와 Fe가 촉매를 구성하는 원소로 포함되어 있는 것을 확인하였다. 또한, 암모니아 분해용 촉매 후보군 중 CoNi와 NiFe는 이미 실험적으로 암모니아 분해용 촉매 성능이 높다는 결과가 보고되었다[39,40]. 따라서, 탐색된 암모니아 분해용 촉매 후보군은 Ru 촉매보다 가격 경쟁력이 높으면서도 촉매 성능도 뛰어난 것으로 기대된다. 향후, 보고되지 않은 촉매 후보군이 실제로 암모니아 분해 반응을 일으키는지 실험을 통해 검증하는 추가적인 연구가 요구된다.

**Table 3.** Comparison of N adsorption energies, similarity to the Ru catalyst's nitrogen adsorption energy from ML predictions and DFT calculations, and the average cost of Ru, Ni, and 12 screened binary alloy catalysts for ammonia decomposition[38]. Asterisk(\*) indicates the binary alloy catalysts excluded in training dataset of machine learning.

Catalyst(Structure)	$E_N(\text{eV})$		$ \Delta E_N - \Delta E_N[\text{Ru, DFT}] $		Average cost (\$/kg)
	ML	DFT	ML	DFT	
Ru(Pure)	-0.824	-0.820	0.004	0	12,860.0
FeMn(Core-shell)	-0.801	-0.867	0.019	0.047	0.1
NiFe(Core-shell)	-0.738	-0.817	0.082	0.003	9.3
CuMn(Core-shell)	-0.732	-0.811	0.088	0.009	5.0
CuNi(Core-shell)*	-0.553	-0.448	0.267	0.372	14.2
CuCo(Core-shell)	-0.540	-0.735	0.280	0.085	19.6
TiCr(Intermetallic)	-0.386	-0.548	0.434	0.272	8.2
NiNb(Intermetallic)	-1.266	-1.301	0.446	0.481	31.7
TaMn(Intermetallic)	-1.279	-1.411	0.459	0.591	95.0
CrFe(Core-shell)*	-1.290	-1.276	0.470	0.456	4.8
NiCo(Core-shell)	-0.280	-0.314	0.540	0.506	23.9
TiMn(Intermetallic)	-0.181	-0.264	0.639	0.556	3.4
FeZn(Intermetallic)*	-0.171	-0.251	0.649	0.569	1.7
Ni(Pure)	-0.075	-0.076	0.745	0.744	18.4

#### 4. 결 론

우리는 친환경적인 수소 에너지 생산 기술 중 하나인 암모니아 분해 반응을 위한 촉매를 탐색하였다. 암모니아 분해용 촉매의 성능은 촉매 표면에 대한 질소 흡착에너지와 유사한 경향성을 보이므로, 촉매 성능을 나타낼 수 있는 단순한 지표로 질소 흡착에너지를 사용하였다. 단일 금속 중에서는 Ru 촉매가 암모니아 분해용으로 높은 성능을 나타내는 것으로 알려져 있지만, 가격이 비싸기 때문에 이를 대체할 촉매 후보로 단일 금속을 넘어 코어-셸 및 금속 간 화합물을 포함한 이중 합금으로 확장하였다. 본 연구에서는 DFT 계산을 통해 단일 금속 및 이중 합금 촉매 소재에 대한 데이터를 총 344개 수집하였다. 수집한 암모니아 분해용 촉매 데이터를 이용하여 질소 흡착에너지를 빠르게 계산할 수 있는 기계 학습 모델을 개발하였다. 이 모델은 그래프 기반 인공지능망 구조를 따르며, 제일원리 계산이 필요 없는 입력 데이터를 사용할 수 있었다. 우리가 개발한 기계 학습 모델을 통해 암모니아 분해용 촉매 후보 소재의 질소 흡착에너지를 빠르게 예측할 수 있었다. 또한, 촉매 안정성, 암모니아 분해 촉매 활성도, 경제성을 모두 고려하여 암모니아 분해용 이중 합금 촉매 후보 소재 12개를 스크리닝하는데 성공하였다. 본 연구를 통해 암모니아 분해용 촉매뿐만 아니라 에너지 및 환경 문제를 해결할 수 있는 고성능 및 저비용 신소재를 효율적으로 탐색하기 위해 기계 학습 기술을 활용할 수 있을 것이라고 사료된다.

#### 감사의 글

이 논문은 2023학년도 부경대학교 산학협력단(202312040001)과 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 한국연구재단(NRF-2021R1F1A1049465)의 지원을 받아 수행된 연구이며, 이에 감사드립니다.

#### REFERENCES

1. F. Schuth, R. Palkovits, R. Schlogl and D. S. Su, *Energy Environ. Sci.* **5**, 6278 (2012).
2. T. V. Choudhary, C. Sivadinarayana and D. W. Goodman, *Catal. Lett.* **72**, 197 (2001).
3. J. O. M. Bockris, *Int. J. Hydrogen Energy* **38**, 6, 2579 (2013).
4. D. Hauglustaine, F. Paulot, W. Collins, R. Derwent, M. Sand and O. Boucher, *Commun. Earth Environ.* **3**, 295 (2022).
5. I. Lucentini, X. Garcia, X. Vendrell and J. Llorca, *Ind. Eng. Chem. Res.* **60**, 18560 (2021).
6. C. Chen, K. Wu, H. Ren, C. Zhou, Y. Luo, L. Lin, C. Au and L. Jiang, *Energy Fuels* **35**, 11693 (2021).
7. A. D. Carlo, L. Vecchione and Z. Del Prete, *Int. J. Hydrogen Energy* **39**, 808 (2014).
8. S. Sayas, N. Morlanés, S. P. Katikaneni, A. Harale, B. Solami and J. Gascon, *Catal. Sci. Technol.* **10**, 5027 (2020).

9. S. F. Yin, B. Q. Xu, X. P. Zhou and C. T. Au, *Appl. Catal. A* **277**, 1 (2004).
10. A. Mittasch and W. Frankenburg, *Adv. Catal.* **2**, 81 (1950).
11. B. W. J. Chen, L. Xu and M. Mavrikakis, *Chem. Rev.* **121**, 1007 (2021).
12. A. Boisen, S. Dahl, J. K. Nørskov and C. H. Christensen, *J. Catal.* **230**, 309 (2005).
13. L. E. Ratcliff, S. Mohr, G. Huhs, T. Deutsch, M. Masella and L. Genovese, *WIREs Comput. Mol. Sci.* **7**, 1 (2017).
14. F. Brockherde, L. Vogt, L. Li, M. E. Tuckerman, K. Burke and K.-R. Müller, *Nat. Commun.* **8**, 872 (2017).
15. L. Arsenault, A. Lopez-bezanilla and A. J. Millis, *Phys. Rev. B* **90**, 155136 (2014).
16. C. Nam, *Korean J. Met. Mater.* **60**, 619 (2022).
17. J.W. Park, S.-H. Kim, J.S. Kim, B.J. Kim, H.-S. Cheon, and C.-S. Oh, *Korean J. Met. Mater.* **61**, 874 (2023).
18. J. Noh, S. Back, J. Kim and Y. Jung, *Chem. Sci.* **9**, 5152 (2018).
19. B. Meyer, B. Sawatlon, S. Heinen, O. A. v. Lilienfeld and C. Corminboeuf, *Chem. Sci.* **9**, 7069 (2018).
20. X. Ma, Z. Li, E. K. Achenie, and H. Xin, *J. Phys. Chem. Lett.* **6**, 3528 (2015).
21. T. Toyao, K. Suzuki, S. Kikuchi, S. Takakusagi, K.-i. Shimizu and I. Takigawa, *J. Phys. Chem. C* **122**, 8315 (2018).
22. J. R. Kitchin, *Nat. Catal.* **1**, 230 (2018).
23. Z. W. Ulissi, A. J. Medford, T. Bligaard, J. K. Nørskov, *Nat. Commun.* **8**, 14621 (2017).
24. M. Kim, B. C. Yeo, Y. Park, H. M. Lee, S. S. Han and D. Kim, *Chem. Mater.* **32**, 709 (2020).
25. S. Back, J. Yoon, N. Tian, W. Zhong, K. Tran and Zachary W. Ulissi, *J. Phys. Chem. Lett.* **10**, 4401 (2019).
26. G. Ertl, *J. Catal.* **61**, 537 (1980).
27. J. C. Ganley, F. S. Thomas, E. G. Seebauer and R. I. Masel, *Catal. Lett.* **96**, 3 (2004).
28. D. A. Hansgen, D. G. Vlachos and J. G. G. Chen, *Nat. Chem.* **2**, 484 (2010).
29. B. W. J. Chen, L. Xu and M. Mavrikakis, *Chem. Rev.* **121**, 1007 (2021).
30. Z.-J. Zhao, S. Liu, S. Zha, D. Cheng, F. Studt, G. Henkelman, J. Gong, *Nat. Rev. Mater.* **4**, 792 (2019).
31. A. Logadottir, T. H. Rod, J. K. Nørskov, B. Hammer, S. Dahl, C. J. H. Jacobsen, *J. Catal.* **197**, 229 (2001).
32. P. Xie, Y. Yao, Z. Huang, Z. Liu, J. Zhang, T. Li, G. Wang, R. Shahbazian-Yassar, L. Hu and C. Wang, *Nat. Commun.* **10**, 4011 (2019).
33. P. E. Blöchl, *Phys. Rev. B: Condens. Matter Mater. Phys.* **50**, 17953 (1994).
34. G. Kresse and D. Joubert, *Phys. Rev. B: Condens. Matter Mater. Phys.* **59**, 1758 (1999).
35. B. Hammer, L. B. Hansen and J. K. Nørskov, *Phys. Rev. B* **59**, 7413 (1999).
36. H. J. Monkhorst and J. D. Pack, *Phys. Rev. B* **13**, 5188 (1976).
37. J. Moellmann and S. Grimme, *J. Phys. Chem. C* **118**, 7615 (2014).
38. Trading Economics, Commodity Prices <https://tradingeconomics.com/commodities> (2024).
39. L. Li, L. Zhao, Z. Ma, C. Li, J. Duan and W. Wang, *Int. J. Hydrogen Energy* **50**, 36 (2024).
40. S. B. Simonsena, D. Chakraborty, I. Chorkendorff and S. Dahl, *Appl. Catal. A* **22**, 447 (2012).