



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2022-0109598
(43) 공개일자 2022년08월05일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
G06N 20/00 (2019.01) G06N 3/08 (2006.01)
(52) CPC특허분류
G06N 20/00 (2021.08)
G06N 3/08 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2021-0012801
(22) 출원일자 2021년01월29일
심사청구일자 2021년01월29일

(71) 출원인
인하대학교 산학협력단
인천광역시 미추홀구 인하로 100(용현동, 인하대학교)
(72) 발명자
황성원
서울특별시 서초구 동광로32길 7 (반포동, 삼창골든빌라) 101동 301호
황규영
충청북도 영동군 용산면 덕진1길 8-1 주택
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
이원희

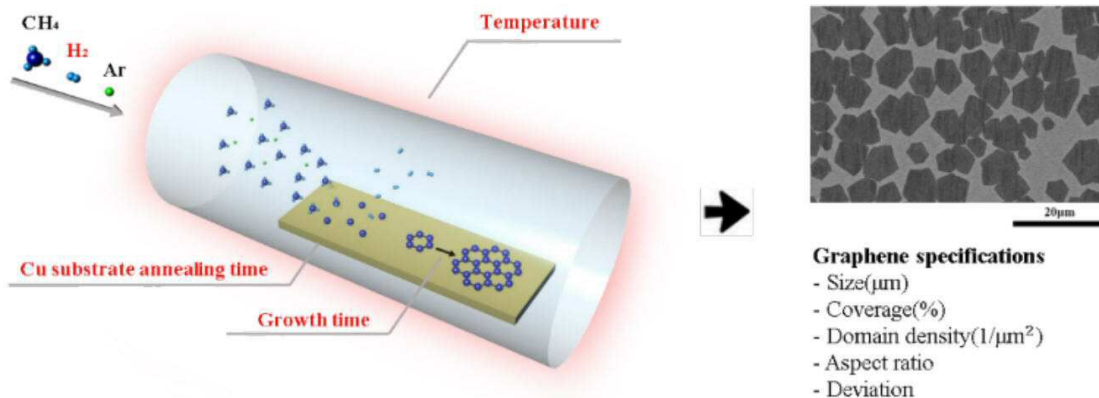
전체 청구항 수 : 총 13 항

(54) 발명의 명칭 CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축 방법 및 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 방법

(57) 요약

본 발명은 CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축 방법 및 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 방법에 관한 것으로, 소정의 화학기상증착(CVD, Chemical Vapor Deposition) 조건 하에 생성된 그래핀의 이미지로부터 객체 검출(object detection) 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델을 (뒷면에 계속)

대표도 - 도1



통해서 머신러닝 모델 학습을 위한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과 데이터를 분석하고 생성하는 학습 데이터 생성단계; 및 상기 학습 데이터를 이용하여, 회귀(Regression) 또는 분류(Classification) 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델을 학습시켜, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계를 모델링할 수 있는 머신러닝 모델을 구축하는 단계;를 포함한다.

본 발명에 따르면, 머신러닝 기반 모델을 도입하여 CVD 조건에 따른 그래핀 사양을 효과적으로 예측함으로써, 개별적 CVD 실험 및 합성된 그래핀의 사양 분석에 소요되는 과도한 시간 및 비용을 절약할 수 있는 우수한 효과가 있다. 또한, 특정 CVD 조건에 따른 그래핀의 사양을 측정 값을 이미지화하여 제공하여 합성되는 그래핀을 직관적으로 예측할 수 있는 효과가 있다.

(52) CPC특허분류

G06N 5/02 (2019.01)

(72) 발명자

신내철

서울특별시 관악구 신림로29길 8 (신림동, 신림현대아파트) 107동 811호

김태훈

인천광역시 부평구 동수로52번길 15-41 (부평동)진북해피드림 1동 301호

명세서

청구범위

청구항 1

소정의 화학기상증착(CVD, Chemical Vapor Deposition) 조건 하에 생성된 그래핀의 이미지로부터 객체 검출(object detection) 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델을 통해서 머신러닝 모델 학습을 위한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과 데이터를 분석하고 생성하는 학습 데이터 생성단계;

상기 학습 데이터를 이용하여, 회귀(Regression) 또는 분류(Classification) 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델을 학습시켜, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계를 모델링할 수 있는 머신러닝 모델을 구축하는 단계;를 포함하는, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축방법.

청구항 2

제1항에 있어서,

상기 객체 검출 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델은 R-CNN (Region Based Convolution Neural Networks)을 포함하는 것을 특징으로 하는, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축방법.

청구항 3

제1항에 있어서,

상기 객체 검출 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델은 객체 분류 단계 및 경계 상자 회귀 단계를 포함하는 훈련을 통해서 구축되는 것을 특징으로 하는, CVD 조건 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축방법.

청구항 4

제1항에 있어서,

상기 회귀 또는 분류 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델은 인공 신경망(ANN, Artificial Neural Network) 및 서포트 벡터 머신(SVM, Support Vector Machine)을 포함하는 것을 특징으로 하는, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축방법.

청구항 5

제1항에 있어서,

상기 CVD 조건은 온도, 어닐링 시간, 수소 공급 및 성장 시간 중에서 적어도 어느 하나를 포함하는 것을 특징으로 하는, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축방법.

청구항 6

제1항에 있어서,

상기 그래핀 사양 결과 데이터는 그래핀의 크기, 커버리지(coverage), 도메인 밀도, 중량비 및 편차 중에서 적어도 어느 하나를 포함하는 것을 특징으로 하는, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템

구축방법.

청구항 7

소정의 화학기상증착(CVD, Chemical Vapor Deposition) 조건 하에 생성된 그래핀의 이미지로부터 객체 검출(object detection) 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델을 통해서 머신러닝 모델 학습을 위한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과 데이터를 분석하고 생성하는 학습 데이터 생성 단계;

상기 학습 데이터를 이용하여 회귀(Regression) 또는 분류(Classification) 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델을 학습시켜, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계를 모델링할 수 있는 머신러닝 모델을 구축하는 단계; 및

구축된 머신러닝 모델을 통하여 특정 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과를 예측하고 생성적 적대 신경망(GAN, Generative Adversarial Network) 알고리즘을 적용하여 이를 이미지화하여 제공하는 단계;를 포함하는, 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 방법.

청구항 8

제7항에 있어서,

상기 객체 검출 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델은 R-CNN (Region Based Convolution Neural Networks)을 포함하는 것을 특징으로 하는, 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 방법.

청구항 9

제7항에 있어서,

상기 회귀 또는 분류 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델은 인공 신경망(ANN, Artificial Neural Network) 및 서포트 벡터 머신(SVM, Support Vector Machine)을 포함하는 것을 특징으로 하는, 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 방법.

청구항 10

제7항에 있어서,

상기 CVD 조건은 온도, 어닐링 시간, 수소 공급 및 성장 시간 중에서 적어도 어느 하나를 포함하는 것을 특징으로 하는, 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 방법.

청구항 11

제7항에 있어서,

상기 그래핀 사양 결과 데이터는 그래핀의 크기, 커버리지(coverage), 도메인 밀도, 중량비 및 편차 중에서 적어도 어느 하나를 포함하는 것을 특징으로 하는, 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 방법.

청구항 12

소정의 화학기상증착(CVD, Chemical Vapor Deposition) 조건 하에 생성된 그래핀의 이미지로부터 객체 검출(object detection) 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델을 통해서 머신러닝 모델 학습을 위한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과 데이터를 분석하고 생성하는 학습 데이터 생성부; 및

상기 학습 데이터를 이용하여 회귀(Regression) 또는 분류(Classification) 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델을 학습시켜, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계를 모델링할 수 있는 머신러닝 모델을 구축하는 머신러닝 모델 구축부;를 포함하는, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축장치.

청구항 13

소정의 화학기상증착(CVD, Chemical Vapor Deposition) 조건 하에 생성된 그래핀의 이미지로부터 객체 검출(object detection) 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델을 통해서 머신러닝 모델 학습을 위한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과 데이터를 분석하고 생성하는 학습 데이터 생성부;

상기 학습 데이터를 이용하여 회귀(Regression) 또는 분류(Classification) 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델을 학습시켜, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계를 모델링할 수 있는 머신러닝 모델을 구축하는 머신러닝 모델 구축부; 및

구축된 머신러닝 모델을 통하여 특정 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과를 예측하고 생성적 적대 신경망(GAN, Generative Adversarial Network) 알고리즘을 적용하여 이를 이미지화하여 제공하는 그래핀 사양 예측부;를 포함하는, 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 장치.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 머신러닝을 기반으로 한, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축방법 및 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 방법에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 가장 잘 알려진 2차원 재료 중 하나인 그래핀은 기계적, 전기적, 열적 특성이 우수하여 투명 전극, 멤브레인, 센서 등 다양한 분야에 적용 가능성이 있고, 많은 연구자들이 이를 상용화하기 위해, 다양한 방법으로 그래핀을 합성하고 있다.

[0003] 그래핀 합성 방법 중 하나인 화학 기상 증착(CVD, Chemical Vapor Deposition)은 고품질의 균일한 그래핀을 대량 생산하는데 적합한 방법으로 인식되고 있다. 그러나, 이 CVD 시스템은 다양한 실험 조건의 영향을 받기 때문에, 목적에 맞는 사양(크기, 커버리지, 형태, 층수 등)을 충족하는 그래핀 합성에 어려움이 있다.

[0004] 또한, CVD 조건과 합성되는 그래핀의 사양(specifications) 사이의 상관 관계를 설명하는 물리적인 식이 부족하고, 개별적 실험 및 그래핀의 사양 분석에는 많은 시간과 비용이 소요되는 문제점이 있다.

[0006] 한편, 머신 러닝(ML, Machine Learning)은 인공지능(AI, Artificial Intelligence)을 구현하는 방법 중 하나이며, 자체적으로 수많은 매개 변수를 학습하고 데이터를 이용하여 인과관계나 현상을 설명할 수 있다. 머신 러닝을 구현한 다양한 방법은 화학 및 공학 분야에서 미시적 수준에서 거시적 수준까지 적용되고 있다.

[0007] 머신러닝은 물리방정식으로 표현하기 어려운 다양한 공정 변수와의 상관관계를 찾는데 바람직하다. 또한, 수송 현상과 핵 형성을 모두 고려한 다중 스케일 모델링은 2D 재료인 그래핀 합성을 시뮬레이션 하는데 도움이 된다.

[0008] 이에 본 발명자들은, CVD 실험 변수를 제어하여 크기, 커버리지, 도메인 밀도, 중형비 등의 사양의 관점에서 그래핀 성장 변화를 관찰하고, 그래핀 합성을 위한 CVD 시스템에 대한 이해를 토대로 머신 러닝을 적용하여 실험 변수와 그래핀 사양 간의 상관관계를 모델링 하고자 한 결과, 본 발명에 이르게 되었다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0010] 본 발명의 목적은 머신러닝을 기반으로 한, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축 방법 및 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 방법을 제공하는데 있다.

과제의 해결 수단

[0011] 본 발명의 일 실시예에 따른 CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축방법은

[0012] 소정의 화학기상증착(CVD, Chemical Vapor Deposition) 조건 하에 생성된 그래핀의 이미지로부터 객체 검출(object detection) 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델을 통해서 머신러닝 모델 학습을 위한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과 데이터를 분석하고 생성하는 학습 데이터 생성단계;

[0013] 상기 학습 데이터를 이용하여, 회귀(Regression) 또는 분류(Classification) 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델을 학습시켜, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계를 모델링할 수 있는 머신러닝 모델을 구축하는 단계;를 포함할 수 있다.

[0015] 본 발명의 일 실시예에 따른 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 방법은

[0016] 소정의 화학기상증착(CVD, Chemical Vapor Deposition) 조건 하에 생성된 그래핀의 이미지로부터 객체 검출(object detection) 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델을 통해서 머신러닝 모델 학습을 위한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과 데이터를 분석하고 생성하는 학습 데이터 생성 단계;

[0017] 상기 학습 데이터를 이용하여 회귀(Regression) 또는 분류(Classification) 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델을 학습시켜, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계를 모델링할 수 있는 머신러닝 모델을 구축하는 단계; 및

[0018] 구축된 머신러닝 모델을 통하여 특정 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과를 예측하고 생성적 적대 신경망(GAN, Generative Adversarial Network) 알고리즘을 적용하여 이를 이미지화하여 제공하는 단계;를 포함할 수 있다.

[0020] 본 발명의 일 실시예에 따른 CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축장치는

[0021] 소정의 화학기상증착(CVD, Chemical Vapor Deposition) 조건 하에 생성된 그래핀의 이미지로부터 객체 검출(object detection) 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델을 통해서 머신러닝 모델 학습을 위한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과 데이터를 분석하고 생성하는 학습 데이터 생성부; 및

[0022] 상기 학습 데이터를 이용하여 회귀(Regression) 또는 분류(Classification) 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델을 학습시켜, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계를 모델링할 수 있는 머신러닝 모델을 구축하는 머신러닝 모델 구축부;를 포함할 수 있다.

[0024] 본 발명의 일 실시예에 따른 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 장치는

[0025] 소정의 화학기상증착(CVD, Chemical Vapor Deposition) 조건 하에 생성된 그래핀의 이미지로부터 객체 검출(object detection) 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델을 통해서 머신러닝 모델 학습을 위한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과 데이터를 분석하고 생성하는 학습 데이터 생성부;

[0026] 상기 학습 데이터를 이용하여 회귀(Regression) 또는 분류(Classification) 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델을 학습시켜, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계를 모델링할 수 있는 머신러닝 모델을 구축하는 머신러닝 모델 구축부; 및

[0027] 구축된 머신러닝 모델을 통하여 특정 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과를 예측하고 생성적 적대 신경망(GAN, Generative Adversarial Network) 알고리즘을 적용하여 이를 이미지화하여 제공하는 그래핀 사양 예측부;를 포함할 수 있다.

발명의 효과

- [0029] 본 발명에 따르면, 머신러닝 기반 모델을 도입하여 CVD 조건에 따른 그래핀 사양을 효과적으로 예측함으로써, 개별적 CVD 실험 및 합성된 그래핀의 사양 분석에 소요되는 과도한 시간 및 비용을 절약할 수 있는 우수한 효과가 있다.
- [0030] 또한, 특정 CVD 조건에 따른 그래핀의 사양을 측정 값을 이미지화하여 제공하여 합성되는 그래핀을 직관적으로 예측할 수 있는 효과가 있다.
- [0031] 본 발명의 효과들은 이상에서 언급한 효과들로 제한되지 않으며, 언급되지 않은 또 다른 효과들은 아래의 기재로부터 통상의 기술자에게 명확하게 이해될 수 있을 것이다.

도면의 간단한 설명

- [0033] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 CVD 공정 조건과 CVD 시스템을 나타낸 모식도 및 합성된 그래핀의 SEM 이미지를 나타낸다.
- 도 2a는 본 발명의 일 실시예에 따른 사전 이미지 처리된 그래핀 이미지에서 검출된 그래핀을 나타내고,
- 도 2b는 본 발명의 일 실시예에 따른 크기 측정을 위해 규칙적인 정육각형 형태로 변환된 검출된 그래핀의 이미지를 나타내고,
- 도 2c는 본 발명의 일 실시예에 따른 Feret 직경을 기반으로 한 종횡비 측정을 나타낸다.
- 도 3은 본 발명의 일 실시예에 따른 잔여 레이어를 갖는 R-CNN 구조를 나타낸다.
- 도 4a는 본 발명의 일 실시예에 따른 전체 클래스에 대한 혼동 행렬을 나타내고,
- 도 4b는 본 발명의 일 실시예에 따른 측정 가능한 그래핀에 대한 PR 곡선을 나타내고,
- 도 4c는 본 발명의 일 실시예에 따른 측정 가능한 그래핀에 대한 ROC 곡선을 나타낸다.
- 도 5a 내지 도 5c는 본 발명의 일 실시예에 따른 훈련 및 테스트 데이터에 대한 경계 상자 회귀의 너비, 높이, 크기를 나타낸다.
- 도 6a는 본 발명의 일 실시예에 따른 R-CNN 모델에 의해 측정된 크기와 수동 측정된 크기를 비교한 것을 나타내고,
- 도 6b는 본 발명의 일 실시예에 따른 일반적인(Fully captured) 그래핀의 Feret 직경 종횡비를 나타내고,
- 도 6c는 본 발명의 일 실시예에 따른 잘린(cut) 그래핀에 대한 Feret 직경 종횡비를 나타내고,
- 도 6d는 본 발명의 일 실시예에 따른 R-CNN에 의해 측정된 종횡비와 수동 측정된 종횡비의 비교를 나타낸다.
- 도 7a는 본 발명의 일 실시예에 따른 인공신경망(ANN)의 구조를 나타내고,
- 도 7b는 본 발명의 일 실시예에 따른 4-폴드 교차 검증에 의한 배깅(Bagging) ANN 모델 개발을 나타낸다.
- 도 8a 및 도 8b는 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀 크기 관한 일반 ANN 모델과 배깅 ANN 모델을 나타내고,
- 도 8c 및 도 8d는 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀의 커버리지에 관한 일반 ANN 모델과 배깅 ANN 모델을 나타낸다.
- 도 8e 내지 도 8h는 본 발명의 일 실시예에 따른 크기 배깅 ANN 모델 및 크기 일반 ANN 모델 중 어느 하나와 커버리지 배깅 ANN 모델 및 커버리지 일반 ANN 모델 중 하나를 조합하여 도출한 도메인 밀도(EDD) 모델을 나타낸다.
- 도 9는 본 발명의 일 실시예에 따른 도메인 밀도, 커버리지, 크기에 대한 예측 값과 실험 값의 차이를 나타낸다.
- 도 10은 본 발명의 일 실시예에 따른 예측 값을 기반으로 한 Lasso 회귀 분석 결과를 나타낸다.
- 도 11은 본 발명의 일 실시예에 따른 온도 및 성장시간에 따라 예측 값을 시각화한 결과를 나타낸다.
- 도 12a는 본 발명의 일 실시예에 따른 각각 다른 크기 이미지에 대한 R-CNN 검출 결과를 나타내고,

도 12b는 본 발명의 일 실시예에 따른 도 12a에 도시된 결과로부터 얻은 그래핀 검출 분포를 나타내고,
 도 12c는 본 발명의 일 실시예에 따른 크기 편차를 위한 ANN 모델 회귀 결과를 나타낸다.
 도 13a는 본 발명의 일 실시예에 따른 전체 데이터 샘플에 대한 중형비를 나타낸 그래프이고,
 도 13b는 본 발명의 일 실시예에 따른 평균을 기준으로 평균 아래(파란색)와 평균 위(빨간색)로 중형비를 분류한 그래프이다.
 도 14는 본 발명의 일 실시예에 따른 특성 선택 프로세스 및 선정된 특성으로 설계한 SVM 모델을 나타낸다.
 도 15는 본 발명의 일 실시예에 따른 생성기 및 감별기를 포함하는 GAN을 나타낸다.
 도 16은 본 발명의 일 실시예에 따른 GAN의 훈련 과정을 나타낸다.
 도 17a는 본 발명의 일 실시예에 따른 생성된 거친 결정립이 배열되고 회전된 이미지를 나타내고,
 도 17b는 본 발명의 일 실시예에 따른 도 17a의 이미지를 648×960 크기로 자른 이미지를 나타내고,
 도 17c는 본 발명의 일 실시예에 따른 도 17b의 이미지를 HMRFM에 의해 노이즈 개선된 이미지를 나타낸다.
 도 17d는 본 발명의 일 실시예에 따른 도 17c의 이미지에 Pix2pix에 의해 SEM 스타일이 부여된 이미지를 나타낸다.
 도 18은 본 발명의 일 실시예에 따른 개발된 머신러닝 모델에 의해 예측된 SEM 이미지를 나타낸다.
 도 19는 본 발명의 일 실시예에 따른 개발된 머신러닝 모델에 의해 특정 CVD 조건 변화에 따른 그래핀의 성장 변화를 나타낸다.
 도 20은 본 발명의 일 실시예에 따른 개발된 머신러닝 모델에 의해 특정 사양을 가지는 그래핀을 합성하기 위한 시뮬레이션 조건을 나타낸다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0034] 본 발명은 여러 변형을 가할 수 있으며 이에 따라 다양한 실시예가 나올 수 있는 바, 특정 실시예를 하단에 제시하고 상세하게 설명하고자 한다.
- [0035] 또한 특별히 정의가 되지 않은 본 명세서의 모든 용어들은 본 발명이 속하는 기술분야의 통상적인 지식을 가진 자 모두에게 이해가 가능한 의미로 사용할 수 있을 것이다.
- [0036] 그러나 이는 본 발명은 하단에 기술될 특정한 실시예에만 한정하려는 것이 아니며, 본 발명의 사상 및 기술 범위에 포함되는 모든 변형, 균등물 내지 대체물을 포함하는 것으로 이해되어야 한다.
- [0037] 따라서 본 명세서에 기재된 실시예와 다른 균등물과 변형 예들이 있을 수 있으며, 본 명세서에서 제시하는 실시예는 가장 바람직한 실시예 일 뿐이다.
- [0039] 이하, 본 발명을 상세히 설명한다.
- [0041] 본 발명의 일 측면에서는,
- [0042] 소정의 화학기상증착(CVD, Chemical Vapor Deposition) 조건 하에 생성된 그래핀의 이미지로부터 객체 검출(object detection) 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델을 통해서 머신러닝 모델 학습을 위한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과 데이터를 분석하고 생성하는 학습 데이터 생성단계;
- [0043] 상기 학습 데이터를 이용하여, 회귀(Regression) 또는 분류(Classification) 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델을 학습시켜, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계를 모델링할 수 있는 머신러닝 모델을 구축하는 단계;를 포함하는, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축방법을 제공한다.
- [0045] 이하, 본 발명의 일 측면에서 제공되는 CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축방법

을 각 단계 별로 상세히 설명한다.

- [0047] 본 발명의 시스템 구축방법은 소정의 화학기상증착(CVD, Chemical Vapor Deposition) 조건 하에 생성된 그래핀의 이미지로부터 객체 검출(object detection) 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델을 통하여 머신러닝 모델 학습을 위한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과 데이터를 분석하고 생성하는 학습 데이터 생성단계를 포함한다.
- [0048] 상기 이미지는 바람직하게는 주사전자현미경으로 관찰한 SEM 이미지일 수 있다.
- [0049] 상기 단계는 CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이 상관관계를 모델링할 수 있는 머신러닝 모델의 학습을 위한 학습 데이터를 생성하는 단계로, 학습 데이터는 CVD 조건과 이에 따른 그래핀 사양 결과 데이터를 포함한다.
- [0050] 상기 객체 검출 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델은 R-CNN (Region Based Convolution Neural Networks)을 포함할 수 있다.
- [0051] 상기 객체 검출 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델은 객체 분류 단계 및 경계 상자 회귀 단계를 포함하는 훈련을 통해서 구축될 수 있다.
- [0052] 상기 단계는 객체 검출 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델에 적용하기 전 사전 이미지 처리하는 단계를 더 포함할 수 있다.
- [0053] 상기 사전 이미지 처리하는 단계는 k-평균 클러스터링을 이용하여 수행될 수 있다.
- [0055] 본 발명의 시스템 구축방법은 상기 학습 데이터를 이용하여, 회귀(Regression) 또는 분류(Classification) 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델을 학습시켜, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계를 모델링할 수 있는 머신러닝 모델을 구축하는 단계를 포함한다.
- [0056] 상기 단계는 CVD 조건에 따른 그래핀 이미지, 바람직하게는 SEM 이미지로부터 얻은 그래핀의 사양 결과 데이터를 학습 데이터로 이용하여, 특정 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과를 분석, 예측할 수 있고 CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계를 모델링할 수 있는 머신러닝 모델을 구축하는 단계이다.
- [0057] 상기 회귀 또는 분류 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델은 인공 신경망(ANN, Artificial Neural Network) 및 서포트 벡터 머신(SVM, Support Vector Machine)을 포함할 수 있다.
- [0058] 상기 CVD 조건은 온도, 어닐링 시간, 수소 공급 및 성장 시간 중에서 적어도 어느 하나를 포함할 수 있다.
- [0059] 상기 그래핀 사양 결과 데이터는 그래핀의 크기, 커버리지(coverage), 도메인 밀도, 중량비 및 편차 중에서 적어도 어느 하나를 포함할 수 있다.
- [0061] 본 발명에 따르면, 머신러닝 기반 모델을 도입하여 CVD 조건에 따른 그래핀 사양을 효과적으로 예측함으로써, 개별적 CVD 실험 및 합성된 그래핀의 사양 분석에 소요되는 과도한 시간 및 비용을 절약할 수 있는 우수한 효과가 있다.
- [0063] 본 발명의 다른 일 측면에서는,
- [0064] 소정의 화학기상증착(CVD, Chemical Vapor Deposition) 조건 하에 생성된 그래핀의 이미지로부터 객체 검출(object detection) 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델을 통해서 머신러닝 모델 학습을 위한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과 데이터를 분석하고 생성하는 학습 데이터 생성 단계;
- [0065] 상기 학습 데이터를 이용하여 회귀(Regression) 또는 분류(Classification) 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델을 학습시켜, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계를 모델링할 수 있는 머신러닝 모델을 구축하는 단계; 및
- [0066] 구축된 머신러닝 모델을 통하여 특정 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과를 예측하고 생성적 적대 신경망(GAN, Generative Adversarial Network) 알고리즘을 적용하여 이를 이미지화하여 제공하는 단계;를 포함하는, 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 방법을 제공한다.

- [0068] 이하, 본 발명의 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 방법을 각 단계 별로 상세히 설명한다.
- [0070] 본 발명의 그래핀 사양 예측 방법은 소정의 화학기상증착(CVD, Chemical Vapor Deposition) 조건 하에 생성된 그래핀의 이미지로부터 객체 검출(object detection) 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델을 통해서 머신러닝 모델 학습을 위한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과 데이터를 분석하고 생성하는 학습 데이터 생성 단계를 포함한다.
- [0071] 상기 이미지는 바람직하게는 주사전자현미경으로 관찰한 SEM 이미지일 수 있다.
- [0072] 상기 객체 검출 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델은 R-CNN (Region Based Convolution Neural Networks)을 포함할 수 있다.
- [0073] 상기 객체 검출 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델은 객체 분류 단계 및 경계 상자 회귀 단계를 포함하는 훈련을 통해서 구축될 수 있다.
- [0075] 본 발명의 그래핀 사양 예측 방법은 상기 학습 데이터를 이용하여 회귀(Regression) 또는 분류(Classification) 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델을 학습시켜, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계를 모델링할 수 있는 머신러닝 모델을 구축하는 단계를 포함한다.
- [0076] 상기 회귀 또는 분류 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델은 인공 신경망(ANN, Artificial Neural Network) 및 서포트 벡터 머신(SVM, Support Vector Machine)을 포함할 수 있다.
- [0077] 상기 CVD 조건은 온도, 어닐링 시간, 수소 공급 및 성장 시간 중에서 적어도 어느 하나를 포함할 수 있다.
- [0078] 상기 그래핀 사양 결과 데이터는 그래핀의 크기, 커버리지(coverage), 도메인 밀도, 중량비 및 편차 중에서 적어도 어느 하나를 포함할 수 있다.
- [0080] 본 발명의 그래핀 사양 예측 방법은 구축된 머신러닝 모델을 통하여 특정 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과를 예측하고 생성적 적대 신경망(GAN, Generative Adversarial Network) 알고리즘을 적용하여 이를 이미지화하여 제공하는 단계를 포함한다.
- [0081] 상기 단계는 구축된 머신러닝 모델을 통하여 예측한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과 값을 이미지, 바람직하게는 SEM 이미지 형태로 이미지화하여 제공하여, 직관적으로 생성된 그래핀을 파악하게 할 수 있다.
- [0082] 상기 단계는 SEM 스타일 이미지를 구현하기 위해 이미지 변환 모델, 바람직하게는 Pix2pix를 적용할 수 있다.
- [0084] 본 발명에 따르면, 머신러닝 기반 모델을 도입하여 CVD 조건에 따른 그래핀 사양을 효과적으로 예측함으로써, 개별적 CVD 실험 및 합성된 그래핀의 사양 분석에 소요되는 과도한 시간 및 비용을 절감할 수 있는 우수한 효과가 있다.
- [0085] 또한, 특정 CVD 조건에 따른 그래핀의 사양을 이미지화하여 제공하여 합성되는 그래핀을 직관적으로 예측할 수 있는 효과가 있다.
- [0087] 본 발명의 다른 일 측면에서는,
- [0088] 소정의 화학기상증착(CVD, Chemical Vapor Deposition) 조건 하에 생성된 그래핀의 이미지로부터 객체 검출(object detection) 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델을 통해서 머신러닝 모델 학습을 위한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과 데이터를 분석하고 생성하는 학습 데이터 생성부; 및
- [0089] 상기 학습 데이터를 이용하여 회귀(Regression) 또는 분류(Classification) 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝

모델을 학습시켜, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계를 모델링할 수 있는 머신러닝 모델을 구축하는 머신러닝 모델 구축부;를 포함하는, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축장치를 제공한다.

[0091] 상기 CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축장치의 각 구성은 본 발명의 일 측면에서 제공되는 CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축방법에서 설명한 바와 같다.

[0093] 본 발명의 또 다른 일 측면에서는,

[0094] 소정의 화학기상증착(CVD, Chemical Vapor Deposition) 조건 하에 생성된 그래핀의 이미지로부터 객체 검출(object detection) 알고리즘을 기반으로 한 신경망 모델을 통해서 머신러닝 모델 학습을 위한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과 데이터를 분석하고 생성하는 학습 데이터 생성부;

[0095] 상기 학습 데이터를 이용하여 회귀(Regression) 또는 분류(Classification) 알고리즘을 기반으로 한 머신러닝 모델을 학습시켜, CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계를 모델링할 수 있는 머신러닝 모델을 구축하는 머신러닝 모델 구축부; 및

[0096] 구축된 머신러닝 모델을 통하여 특정 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과를 예측하고 생성적 적대 신경망(GAN, Generative Adversarial Network) 알고리즘을 적용하여 이를 이미지화하여 제공하는 그래핀 사양 예측부;를 포함하는, 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 장치를 제공한다.

[0098] 상기 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 장치의 각 구성은 본 발명의 일 측면에서 제공되는, 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 방법에서 설명한 바와 같다.

[0101] 이하, 본 발명에 따른 CVD 조건과 그래핀 사양 결과 사이의 상관관계 모델링 시스템 구축 방법 및 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측 방법의 일 바람직한 실시예, 실험예 및 모델을 통하여 자세히 설명한다.

[0103] CVD 시스템과 그래핀의 성장

[0104] 도 1은 CVD 공정 조건과 CVD 시스템을 나타낸 모식도 및 합성된 그래핀의 SEM 이미지를 나타낸 것이다.

[0105] 상기 도 1에 나타난 바와 같이, 단일 구역 튜브 (튜브 외경 50 mm)가 장착된 CVD 성장 시스템이 사용되었다. 35mm X 15 mm 크기로 자른 Cu 포일을 아세트산을 사용하여 세척하여 천연 산화물 층을 제거하고 CVD 시스템에 로드하였다. 그래핀이 성장하기 전에 Ar 과 H₂ (각각 390 및 10 sccm)의 혼합물로 구성된 캐리어 가스가 시스템에 도입되었으며, Cu 포일은 1010에서 1050 ℃까지 15 내지 65분 동안 어닐링 되었다. 그래핀의 성장은 CH₄ (Ar 내 1%, 8sccm)의 도입에 의해 시작되었고, 대기압에서 5 내지 20분 간 계속되었다.

[0106] 3kV 에서 작동하는 전계 방출 주사 현미경 (FESEM Hitachi, SU 8010 / S-4300)을 사용하여 성장한 그래핀의 SEM 이미지를 생성하였다. 모든 SEM 이미지의 배율은 서로 다른 성장 조건을 비교하기 위하여 2000x 로 설정되었다.

[0108] A. 그래핀의 사양 측정

[0109] 본 발명의 일 실시예에서는 객체 검출 알고리즘을 기반으로 한 R-CNN 모델을 개발하여 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 결과 데이터를 생성하고자 한다. 본 발명의 일 실시예에서 CVD 조건은 온도, 어닐링 시간, 수소 공급, 성장 시간을 고려하였고, 그래핀 사양은 그래핀 크기, 커버리지, 중형비, 도메인 밀도 및 편차를 고려하였다.

[0110] A.1 사전 이미지 처리

- [0111] R-CNN을 개발하기 전, SEM 이미지에 나타난 배경 및 그래핀 결정립이 모든 SEM 이미지에서 동일한 색상으로 나타나지 않아, MATLAB 환경에서 각 SEM 이미지 내 그래핀 및 배경의 숫자 정보가 상이하므로, 일관된 데이터를 위해 사전 이미지 처리하였다.
- [0112] 648 x 960의 픽셀 해상도로 크기를 조정하였고 1 픽셀의 크기가 20 / 307.2 μm 가 되었고 노이즈를 제거하기 위해 Gaussian 함수를 곱하였다. 이어서, k-평균 클러스터링(k-mean clustering)을 사용하여 그래핀과 배경으로 구성된 숫자를 0 (그래핀, 검은색) 및 255 (배경, 흰색)의 단순한 이진 범주로 구분하였다.
- [0113] 두 개의 중심(centroids)이 계산되었고, 하기 수학식 1과 같이 유클리드 거리로 정의된 목적 함수를 사용하여 그래핀과 배경에서 가장 가까운 중심을 갖는 클러스터의 각 지점을 가져왔다. 중심을 찾기 위해 픽셀을 클러스터링하고 클러스터 사이의 경계지점에서 임계 값(threshold value)을 찾아 픽셀이 이 임계 값을 기반으로 검은 색 또는 흰색으로 변환되도록 한다.

수학식 1

[0115]
$$\text{objective function}, j = \sum_{j=1}^k \sum_{i=1}^n \|x_i^{(j)} - c_j\|^2$$

- [0116] 상기 수학식1에서 k는 클러스터의 수, n은 데이터의 수, $X_i^{(j)}$ 는 클러스터 j의 i 번째 데이터, C_j 는 클러스터 j의 중심을 나타낸다.

[0118] A.2 커버리지, 그래핀의 크기 및 종횡비 측정 기준

- [0119] 사전이미지 처리로 흑백 변환된 그래핀의 이미지를 사용하여 하기 수학식 2에 의하여 커버리지를 계산한다.

수학식 2

[0121]
$$\text{coverage}[\%] = \frac{\text{whole graphene area}(\text{number of 0 values})}{\text{overall area of SEM image}(\text{number of 0 and 255 values})} \times 100$$

- [0123] 그래핀의 모양이 모두 다르기 때문에 측정 기준을 고려하여 그래핀의 크기 등을 측정하기 위하여 객체 검출 알고리즘을 적용하였다.
- [0124] 일반적으로 그래핀은 지그재그 에지 (zigzag edge), 암체어 에지 (armchair edge)를 가지고, 지그재그 에지를 유지하면서 표면적을 최소화하여 성장한 정육각형 형태가 가장 안정적이고 대표적인 형태이다.
- [0125] 도 2a는 사전 이미지 처리된 그래핀 이미지에서 검출된 그래핀을 나타내고, 도 2b는 크기 측정을 위해 규칙적인 정육각형 형태로 변환된 검출된 그래핀의 이미지를 나타내고, 도 2c는 Feret 직경을 기반으로 한 종횡비 측정을 나타낸다.
- [0126] 이전 연구에서는 가장 긴 길이와 가장 짧은 길이를 수동으로 평균하여 그래핀의 도메인 크기를 측정한 반면, 본 연구에서는 객체 검출 알고리즘을 기반으로 한 R-CNN 모델은 각각의 그래핀을 직사각형 상자에 넣고 상자 안의 그래핀을 정육각형 모양으로 가정한 뒤, 그 육각 길이를 특정하여 그래핀의 크기를 측정하였다. 검출 상자의 단일 그래핀에 대한 면적 A를 계산 할 때의 하기 수학식 3 내지 4를 이용하여 이상적인 육각 길이 L을

계산하였다.

수학식 3

$$\text{Regular hexagonal area, } A = \frac{3\sqrt{3}}{8} \cdot L^2 [\mu m^2]$$

수학식 4

$$\text{Regular hexagon assumed graphene size, } L = \sqrt{\frac{8}{3\sqrt{3}}} A [\mu m]$$

또한, Feret 직경을 사용하여 개별 그래핀의 종횡비를 측정하였다. Feret 직경은 도 2c에 도시된 바와 같이, 버니어 캘리퍼스를 사용하여 측정한 가장 긴 길이 또는 가장 짧은 길이를 나타낸다.

A.3 객체 검출 알고리즘을 기반으로 한 R-CNN 모델 개발

MATLAB에서 구현된 감지 알고리즘을 이용하여 R-CNN 아키텍처를 설계하였다. 이 R-CNN 모델은 객체 분류(object classification)와 경계 상자 회귀(bounding box regression)의 두 절차를 통하여 훈련한다.

먼저, 객체 분류를 위한 훈련 첫 단계는 에지 상자 알고리즘(edge box algorithm)을 사용한 영역 제안(region proposal)이다. 초기 이미지의 기울기 크기와 방향을 기반으로 그래핀 결정립계와 유사한 에지 그룹 맵이 표시된다. 주어진 에지 그룹의 선호도를 기반으로 2000개 정도의 랩핑된 이미지가 제안되었다.

다음으로, GT(Ground Truth)와 관련하여 IoU(Intersection-over-union)이 0.8보다 높은 값인 제안된 상자를 선택하여 R-CNN 훈련을 위한 데이터로 선택하였다.

CNN은 숫자로 표현된 이미지와 커널 간의 컨볼루션 계산을 통해 고정 길이 벡터로 랩핑된 이미지의 특성(feature)을 추출한다. 이 특성 벡터는 세가지 특정 값 (X_i), 즉 측정 가능한 결정립, 측정할 수 없는 결정립 및 배경으로 완전 연결 레이어를 통해 변환된다.

그 다음, 하기 수학식 5에 표시된 바와 같이 소프트맥스 레이어를 통해 각 레이블 (j)의 신뢰도를 나타내는 0-1 범위의 정규화된 값으로 변환된다. 실제 값과 예측 값의 차이를 보여주기 위해 적용된 교차 엔트로피(cross entropy)를 손실함수로 채택하였으며, 이는 최소화된 것으로 간주되고, 하기 수학식 6과 같다.

수학식 5

$$\text{softmax, } q(x_i) = \frac{\exp(x_i)}{\sum_j \exp(x_j)}$$

수학식 6

$$\text{cross entropy}, H(p, q) = -\sum_x p(x) \cdot \log q(x)$$

여기서, $p(x_j) = \text{final classification value, 0 or 1}$ 이다.

머신러닝의 본질을 기반으로 CNN은 커널을 자체 학습하여, 각 클래스에 대해 일관된 특징과 완전 연결 레이어의 가중치를 추출하여 손실함수를 최소화하고 실제 그래핀과 R-CNN 검출 그래핀 사이의 오류를 줄인다.

CNN을 훈련할 때 GPU 메모리가 전체 데이터 세트를 처리할 수 없어 적절한 미니 배치 크기로 분할하기 때문에, 확률적 경사하강법(SGD, Stochastic Gradient Descent)이 사용된다. SGD를 사용하여 훈련 속도를 높이는 가장 일반적인 방법은 학습률을 높이는 것이다. 그러나, 높은 학습률은 일반적으로 기울기 폭발을 유발하고, 또한 다른 문제로, 역전파를 통해 커널을 업데이트 하기 위해 전송된 그래디언트는 레이어가 소위 경사 소멸을 통해 깊어감에 따라 사라질 수 있다.

따라서 이 문제를 해결하기 위해, CNN 아키텍처는 배치 정규화 레이어와 잔여 레이어로 설계되었다. 컨볼루션 레이어 사이에 배치 정규화 레이어를 포함하여 컨볼루션 후 값을 정규화하므로 기울기 폭발 없이 학습률을 높일 수 있다.

도 3은 잔여 레이어를 갖는 R-CNN 구조를 나타낸다. 잔여 컨볼루션 레이어는 CNN이 그래디언트를 잃는 것을 방지하고, 이전 단계의 그래디언트를 보존 및 전송하도록 하여, 문제를 우회하는데 도움이 된다. 또한, 비선형성을 위한 ReLU 레이어는 그래디언트 소멸에 효과적이며, 평균 풀링 레이어는 차원수를 줄이고 특성을 선택한다.

경계 상자 회귀(좌표 회귀)와 관련하여, 영역 제안에서 제안한 좌표가 GT와 다르기 때문에, 래핑된 입력 이미지 좌표를 GT 좌표와 더 가깝게 재조정해야 한다. 따라서, 선형 회귀 형태의 경계 상자 회귀는 완전 연결 레이어의 기울기를 사용하여 좌표를 수정할 수 있는 변환을 학습한다. 그 다음, 회귀자는 입력 제안의 좌표를 조정하여 실제 좌표와 일치하도록 한다.

A.4 R-CNN 모델의 검증 및 성능 평가

훈련 후 이미지 검출 테스트 단계는 훈련과 유사한 형태로 수행된다.

영역 제안은 SEM 이미지의 실제 그래핀 입자 수보다 훨씬 많은 수의 경계 상자를 제안한다. 그 후 래핑된 이미지는 CNN을 통과하여 특성 벡터로 변환된다. 이 특성 벡터는 완전 연결 레이어를 따라 소프트맥스 레이어를 통과한다. 훈련된 소프트맥스 레이어는 그래핀에 얼마나 가까운지에 대한 신뢰를 준다. 다음으로, NMS(non-maximum suppression) 알고리즘에서 같은 포지션에 있는 그래핀 결정립에 대한 신뢰도 순서를 기반으로 예측된 경계 상자를 정렬하고, IoU가 가장 높은 점수인 경계 상자를 제외하고 삭제되며, 가장 높은 점수인 경계 상자가 최종 개체로 선택된다. 배경을 줄여서 그래핀의 실제 크기로 재조정하고, 상자에 그래핀 이외의 부분이나 노이즈가 있는 경우, Pix2pix 모델로 제거한다.

상기 R-CNN 검출 프로세스를 통해 분류 및 회귀 측면에서 모델의 성능을 측정하였다. R-CNN이 얼마나 잘 훈련되었는지 평가하기 위한 지표로서, 경계 상자 회귀, 혼동 행렬에 대한 R-값(하기의 수학식 7)과 분류 성능에 대한 PR 곡선을 사용하였다.

수학식 7

$$\text{correlation coefficient, } R = \sqrt{1 - \left[\frac{\sum_{l=1}^n (t_l - \alpha_l)^2}{\sum_{l=1}^n \alpha_l^2} \right]}$$

[0157]

[0159] 2300개의 개별 그래핀 이미지가 분류 테스트에 사용되었다. 도 4a는 전체 클래스에 대한 혼동 행렬을 나타낸다. R-CNN에 의해 예측된 세 개의 레이블 중 가장 높은 신뢰도를 가진 레이블을 표시하기 위해 혼동 행렬 형태로 제시된다.

[0160] 측정 불가능한 그래핀은 심하게 겹쳐진 것이거나 이미지 가장자리에 잘린 그래핀으로 표시된다. 측정 가능한 그래핀 결정립은 대부분 측정 가능한 그래핀 결정립으로 분류되었다. 배경의 GT에는 SEM 이미지의 모서리에 잘린 그래핀이 포함되어 훈련 중 셀 수 없는 그래핀과 유사한 노이즈로 작용하였다.

[0161] 각 개별 클래스에 집중하여 분류 성능을 시각적으로 이해하기 위해 PR 및 ROC 곡선을 사용하였다. 도 4b 및 도 4c는 각각 측정 가능한 그래핀에 대한 PR 곡선 및 ROC 곡선을 나타낸다.

[0162] PR, ROC 곡선을 그리기 위한 정확도, 정밀도, 재현율, 특이도로 표시되는 인덱스 값이 필요하고, 이는 도 4a의 각 클래스에 대한 True Positive(TP), False Negative(FN), False Positive(FP), True Negative(TN)과 관련된다.

[0163] 정밀도(precision)는 그래핀으로 예측된 검출 결과 중 실제 그래핀의 비율을 나타내고, 재현율(recall)은 실제 그래핀 중 정확하게 예측된 그래핀의 비율을 나타내고, 특이도(specificity)는 그래핀이 아닌 것으로 예측된 것 중 실제 그래핀이 아닌 것을 나타낸다. 이 값들은 항상 0과 1 사이 값이다. 하나의 값으로 모델의 성능을 평가하는 것은 불가능하며, 두 값을 PR 곡선, 평균 정밀도(AP) 등으로 결합하여 성능을 평가한다.

[0164] 본 발명의 일 실시예에서 측정 가능한 그래핀에 대한 분류 성능을 평가한 혼동행렬을 사용하여 하기 수학식 8 내지 11과 같이 계산할 수 있다.

수학식 8

$$\text{Accuracy for measurable graphene} = \frac{TP+TN}{TP+FP+FN+TN} = \frac{1213+1085}{1213+12+44+1085} = 0.976$$

[0166]

수학식 9

$$\text{Precision for measurable graphene} = \frac{TP}{TP+FP} = \frac{1213}{1213+12} = 0.998$$

[0167]

수학식 10

$$\text{Recall for measurable graphene} = \frac{TP}{TP+FN} = \frac{1213}{1213+44} = 0.965$$

[0168]

수학식 11

$$\text{Specificity for measurable graphene} = \frac{TN}{FP+TN} = \frac{1085}{12+1085} = 0.989$$

[0169]

[0171]

PR 곡선은 신뢰도에 대한 임계 값을 변경하여 성능을 평가하는데 사용된다. 예를 들어, 측정 가능한 그래핀 클래스에 대해 0.9850을 임계 값으로 하면 모델은 이미지 신뢰도가 0.9850보다 높을 때 측정 가능한 그래핀으로 판단한다. 이러한 방식으로 임계 값을 낮춤으로써 각 경우에 대한 정밀도 및 재현율을 평가한다.

[0172]

PR 곡선은 수직 모양(vertical shape)에 가까울수록 분류 성능이 향상된 것을 의미한다. PR 곡선의 면적을 계산하여 평균 정밀도(AP)라는 단순한 값을 이용해 모델의 정확도를 표현할 수 있다. AP가 1에 가까운 모델이 분류 성능이 좋다.

[0173]

ROC 곡선과 AUC는 재현율과 1-특이도 사이 상관관계를 통해 동일한 방식으로 표현되며 이는 False Positive rate을 나타낸다.

[0174]

상기 도 4b 및 도 4c에 도시된 바와 같이, 본 연구에서 측정 가능한 그래핀에 대한 PR 및 ROC 곡선은 명확한 수직 모양을 보여주며 AP, AUC는 각각 0.994, 0.9944에 해당한다. 정확도를 향상시키기 위한 추가 단계가 필요하지 않도록 측정 가능한 그래핀을 찾고자 하고, 다음 단계에서 측정 오류를 최소화하기 위해 올바른 그래핀을 검출하고 측정해야 하므로 높은 분류 성능을 달성하는 것이 중요하다.

[0176]

경계 상자 회귀는 다양한 크기의 입자를 포함하는 총 720개의 SEM 이미지가 훈련에 사용되었다. 이미지 검출 상자에 대한 평균 값을 사용하였다. R-CNN에서 제공하는 경계 상자가 GT의 경계 상자를 얼마나 잘 설명하는지 확인하기 위해 평균 값, 즉 너비, 높이 및 경계 상자의 가정된 정육각형의 크기를 비교하였다. 오차(%)와 R-값을 통해 회귀 훈련 결과를 상관 계수로 평가하였다.

[0177]

도 5a 내지 도 5c는 훈련 및 테스트 데이터에 대한 경계 상자 회귀의 평균 너비, 높이, 크기를 나타낸다. 720개 훈련 데이터 세트의 너비, 높이 및 육각형 크기에 대한 오류는 8.34%, 6.73% 및 5.98%이고, R-값은 0.9631, 0.9632 및 0.9716이었다. 또한, 80개의 테스트 세트에 대해 모델은 각각 6.26%, 5.81%, 5.35%의 오류와 0.9811, 0.9916, 0.9908의 R-값을 보였다.

[0179]

A.4 그래핀의 크기 및 종횡비의 측정 및 평가

[0180]

동일한 조건에서 평균 4개의 SEM 이미지가 제공된 것을 고려하여, 동일한 실험 조건에서 측정된 크기와 종횡비를 평균화하였다. 검출된 모든 그래핀의 사양이 편차와 함께 수집되고 평균화되었다.

[0181]

다양한 유형의 그래핀이 규칙적인 육각형 형태로 변환됨에 따라 R-CNN을 사용하여 37개의 다양한 CVD 조건에 대한 육각형 크기를 측정하였다. 전체 입력 이미지를 결정립이 늘어난 특정 각도로 회전하도록 한 다음, Pix2pix 모델을 채택하여 경계 상자의 노이즈를 수정하였다.

[0182]

도 6a는 R-CNN 모델에 의해 측정된 크기와 수동 측정된 크기를 비교한 것을 나타낸다. 수동 측정 크기는 각 결정립에서 가장 긴 길이와 가장 짧은 값의 평균 값인, 수동으로 측정된 크기이다. 도 6a에 따르면, 거의 유사한 값을 갖고, 크기가 클수록 약간 상이한 것으로 나타났다.

[0183]

검출된 개별 그래핀으로부터 그래핀의 종횡비를 구하여 Feret 직경을 얻었다. 그래핀의 Feret 직경의 한 쪽과 맞는 새로운 직사각형을 개별 그래핀에 형성하였다. 그 다음, 그래핀의 종횡비를 새로운 직사각형의 종횡비로 정의하였다.

[0184]

도 6b는 일반적인(Fully captured) 그래핀의 Feret 직경 종횡비를 나타내고, 도 6c는 잘린(cut) 그래핀에 대한 Feret 직경 종횡비를 나타내며, 도 6d는 R-CNN에 의해 측정된 종횡비와 수동 측정된 종횡비의 비교를 나타낸다.

[0185]

일반 그래핀 결정립은 최소 Feret 직경 기준 종횡비가 최대 Feret 직경 기준 종횡비보다 컸으며, 합리적으로 수정된 직사각형을 보였다. 그 결과, 일반 그래핀의 경우 최소 Feret 직경 종횡비가 선택되었다. 컷 오프 그래핀

은 일반적으로 수동 측정 값이 훨씬 가까운, 최대 Feret 직경을 기반으로 한 종횡비를 사용한다. 따라서, 검출된 그래핀에 대해 서로 다른 두 가지 방향의 종횡비를 비교하여 그 중 큰 값을 기준으로 선택하였다.

[0186] 결과적으로, 도 6d를 살펴보면, R-CNN에 의한 종횡비는 그래핀의 최단 또는 최장 직경이 아닌 이미지 생성에 적합한 직사각형 종횡비를 기반으로 하기 때문에, 값의 다소 상이하나, 수동 측정한 종횡비와 비교한 경우와 거의 동일한 경향을 보였다.

[0188] B. CVD 조건과 그래핀의 사양 간의 상관관계 모델링을 위한 머신러닝

[0189] 본 발명의 일 실시예에서는 회귀에 능한 인공신경망(ANN) 및 분류 알고리즘의 일종인 서포트 벡터 머신(SVM)을 개발하여 CVD 조건과 그래핀 사양 간의 상관관계를 모델링 하고자 한다.

[0190] R-CNN을 이용하여 각 CVD 조건에 대한 그래핀의 크기와 종횡비 데이터, 사전 이미지 처리로 k-평균 클러스터링을 사용하여 흑백이미지에서 커버리지 데이터를 얻었다. 이러한 사양과 CVD 조건 간의 상관관계를 확인하기 위하여 크기 및 커버리지에 대한 ANN 모델 및 종횡비에 대하여 SVM 모델을 개발하였다.

[0191] 또한, 특정 CVD 실험에서 검출된 모든 SEM 이미지의 그래핀에 대한 평균 값을 이용한 것을 고려하여 크기 편차에 대한 ANN 모델을 개발하였다.

[0192] 또한, 상기 수학적 2 내지 4를 사용하여 하기의 수학적 12에서 추정된 도메인 밀도 (EDD)를 도출하여, 크기 및 커버리지 모델링 후 EDD 모델을 개발하였다.

수학적 12

$$\text{estimated domain density, EDD} = \frac{\text{coverage}}{\text{average regular hexagon area}} = \frac{8}{3\sqrt{3}} L^2 \cdot \text{coverage}$$

[0194]

[0196] B.1 ANN 모델

[0197] 본 발명의 일 실시예에서 ANN은 회귀를 통해 CVD 조건과 크기, 커버리지, 도메인 밀도 및 크기 편차와의 상관관계를 모델링 한다.

[0198] 본 발명의 일 실시예에서 서포트 벡터 머신(SVM)은 그래핀 모양에 대한 CVD 조건의 영향을 확인하고 종횡비를 분류한다.

[0199] ANN을 개발하기 전, 효과적인 훈련을 위해 입력 및 출력 데이터가 동일한 규모로 정렬되도록 하기 수학적 13와 같이 정규화되었다.

수학적 13

$$\text{normalized } x_i, x'_i = \frac{x_i - \min(x_n)}{\max(x_n) - \min(x_n)}$$

[0200]

[0202] 도 7a는 인공신경망(ANN)의 구조를 나타낸 것이다.

[0203] 도 7a 도시된 바와 같이, CVD 조건과 결과 간의 상관관계를 설명하기 위해 히든 계층과 출력 층 하나가 있는 피드 포워드 신경망 (FFNN)을 개발하였다. FFNN은 연결된 백루프 없이 한 방향으로만 정보가 입력에서 출력으로 흐르게 한다. 개별 뉴런 간의 연결 수와 전달함수 유형에 제한이 없다. 은닉 뉴런에 들어가기 전에 입력 변수에

가중치를 곱한다. 그런 다음 바이어스로 합산되고 전달함수, 쌍곡선 탄젠트 또는 모델에서 적절하게 채택된 순수 선형성을 통해 비선형 특성과 복잡성을 갖는다. 마지막으로, 출력 레이어에서 이 프로세스를 반복하면 크기 및 커버리지에 대한 예측 값이 히든레이어에 출력으로 표현된다.

[0204] 신경망의 최적화된 가중치를 찾기 위해 ANN 훈련에 베이시안 정규화(BR, Bayesian regularization) 역전과 알고리즘을 채택하였다. MATLAB 환경에서 BR 알고리즘을 사용하면, 데이터셋이 충분하지 않을 때 유효성 검사에 사용되는 데이터를 나눌 필요가 없다. BR 알고리즘은 데이터 세트에서 모델이 얼마나 잘 수행되는지 뿐만 아니라, 가중치가 크면 과적합이 발생하기 때문에 ANN 모델의 가중치가 얼마나 큰지에 기반한다. 하기의 수학식 14은 목적함수이고, 가중치의 제곱 합에 대한 항이 목적함수에 추가되어, 모델이 가중치 감소 방향으로 이동하도록 정규화로 사용된다. 이를 L2 규제(L2 regulation)이라고 한다.

수학식 14

$$J(\text{objective function}) = \alpha \cdot E_D + \beta \cdot E_w$$

[0206]

[0207] 여기서, α 및 β 는 목적함수 파라미터이고, E_D 는 오류 제곱의 합으로서 $\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (t_i - a_i)^2$ 로 표현되고, E_w 는 가중치 제곱 합이며 $\frac{1}{2} \sum_{i=1}^n w_i^2$ 로 표현된다.

[0209] 그 후, ANN은 그래디언트 변경과 동일한 양으로 가중치를 갱신하고 출력 층에서 입력 층으로 역전파를 통해 전송하여 훈련된다. 가중치의 변화는 하기의 수학식 15와 같이 각 가중치에 대한 목적 함수의 기울기를 기반으로 한다. 예측 값은 다시 정방향으로 다시 조정된 가중치를 사용하여 계산된다. 신경망의 가중치는 최적화되고 수렴되며 여러 번 위 프로세스를 반복한다. 마지막으로, ANN은 목적 함수를 최소화할 방향으로 가중치를 자체 학습한다.

수학식 15

$$w'_{i,j} = w_{i,j} - \eta \frac{\partial J}{\partial w_{i,j}}$$

[0211]

[0212] 여기서, η 은 학습률, i 는 ANN 계층 수, j 는 노드 수를 의미한다.

[0214] 또한, 본 발명의 일 실시예에서 ANN 개발에 k-폴드 교차 검증(k-fold cross-validation)을 도입하여, 유연한 모델을 개발하고자 하였다.

[0215] 도 7b는 4-폴드 교차 검증에 의한 배깅(Bagging) ANN 모델 개발을 나타낸 것이다. 일 실시예에서, 32개의 데이터 세트에 대해 4-폴드 교차 검증을 적용하고 4개의 ANN 모델을 개발하였다. 4겹 교차 검증을 통한 4개의 모델을 통합한 배깅 ANN 모델을 개발하였고, 결과를 모든 데이터 세트를 훈련데이터로 이용하여 설계된 일반 모델과 비교하여, 더 설명 가능한 모델을 선택하였다.

[0217] **B.2 L1 규제(L1 Regulation)**

[0218] 본 발명의 일 실시예에서 개발한 모델의 인과관계와 결과에서 CVD 각 조건의 중요성을 파악하기 위하여, L1 규제라고 하는 Lasso 회귀를 적용하였다. Lasso 회귀는 다중선형 회귀를 통한 평균 제곱 오차인 하기 수학식 16으로 표현되는 목적함수를 최소화하고 동시에 가중치 절대값의 합계를 줄인다.

수학식 16

$$\underset{w, b}{\operatorname{argmin}} \left\{ \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (y_i - \hat{y}_i)^2 + \lambda \sum_{j=1}^m \|w_j\| \right\}$$

[0220]

[0221] 여기서, $y_i = w_1x_1 + w_2x_2 + w_3x_3 + w_4x_4 + b$ 이고, λ 는 가중치 패널티 파라미터이고, w 는 가중치이고, n 은 전체 데이터를 의미한다.

[0222] 파라미터 λ (가중치에 대한 패널티)가 증가했으므로, 가중치가 순차적으로 0에 가까워지는데, 이는 상대적으로 중요한 변수가 더 높은 λ 로 남아있어 특성 선택으로 사용된다는 것을 나타낸다. 먼저 0으로 수렴하는 변수는 모델에 미치는 영향이 가장 적다. 가중치는 모델에서 예측된 데이터를 사용하고 Lasso 회귀를 이용하여 순위를 지정하였다.

[0224] B.3 SVM 모델

[0225] 본 발명의 일 실시예에서 중형비와 CVD 조건 간 상관관계를 해석하는 분류기인 SVM을 개발하였다.

[0226] SVM은 형상 공간을 초평면(hyper plane)으로 기하학적으로 나누어 데이터에서 초평면까지의 거리를 최대화한다. 두개의 가상 평면은 각각 초평면에서 +1과 -1 떨어져 있으며 이 두 가상 평면의 데이터는 서포트 벡터이다. 특성 X_i 에 대한 모든 가능한 $(w \cdot \phi(x) + b = 0)$ 초평면 중에서 선택한 초평면은 w (초평면의 법선 벡터)에 대해 $\|w\|^2/2$ (SVM의 목적함수)로 정의되는 가장 큰 마진을 가진 초평면이다. 다음으로, $y_i(w^T \cdot \phi(x) + b) \geq 1$ 에 따라 변환된 라그랑지안(Lagrangian)을 사용하여 해결된다. 과적합을 방지하면서 실제 데이터를 완전히 분류하는 것은 불가능하고 따라서, 오류를 수용하기 위한 여유 변수(slack variables) ξ_i 및 비선형 초평면으로 더 높은 차원의 특성들을 맵핑하기 위한 가우스 함수 ϕ 와 같은 커널함수를 도입하여 SVM을 최적화하였다. 이에 변경된 목적함수는 하기 수학식 17과 같다. 그 다음 하이퍼 파라미터를 추정하기 위한 획득함수로 예상 개선 플러스(expected improvement-plus)를 사용하여 베이지안 최적화를 적용하였다.

수학식 17

$$\begin{aligned} \underset{w, b, \xi}{\operatorname{minimize}} \quad & \frac{\|w\|^2}{2} + C \sum_{i=1}^n \xi_i \\ \text{subject to} \quad & y_i(w^T \cdot \phi(x) + b) \geq 1 - \xi_i \\ & \xi_i \geq 0, \phi(x_i, x_j) = e^{-\gamma(x_i - x_j)^2} \end{aligned}$$

[0228]

[0230] 여기서, C 는 패널티 항 ξ_i 에 대한 마진 크기와 관련된 하이퍼 파라미터(hyper parameter)로, C 가 클수록 마진이 높아진다. 또 다른 하이퍼 파라미터는 가우스 함수의 커널 스케일 γ 로, γ 이 작을수록 초평면이 더 비선형임을 의미한다.

[0232] B.4 결과

[0233] **ANN 모델 개발 및 성능 평가**

[0234] 32개의 CVD 실험을 기반으로 ANN 모델을 개발하고 크기 모델링 후, 5개의 추가 실험으로 성능을 평가하였다. 또한, 커버리지 ANN 모델을 훈련시 크기 측정이 불가능하도록 100% 커버리지로 12개의 추가 실험을 수행하였다.

[0235] ANN을 훈련시킨 후, 각 테스트 폴드(test fold)에 대해 0.9보다 큰 R-값의 모델 너비를 선택하고 배경이라고 하는 하나의 모델로 통합하였다. 사양 별로 개발된 두 가지 모델의 유형 (일반 모델 및 배경 모델)에 대해 더 설명 가능한 모델 (explainable model)을 선택하였다.

[0236] 도 8a 및 도 8b는 그래핀 크기 관한 일반 ANN 모델과 배경 ANN 모델을 나타낸다. 도 8c 및 도 8d는 그래핀의 커버리지에 관한 일반 ANN 모델과 배경 ANN 모델을 나타낸다. 도 8a 내지 도 8b에 도시된 바와 같이, 배경 모델이 일반 모델의 R-값과 평균 제곱 오차 모두 더 나은 회귀 결과를 나타내었다. 반면, 일반 모델은 도 8c 내지 도 8d에 도시된 바와 같이, 커버리지 모델링에 대해 더 나은 결과를 보였다.

[0237] 도 8e 내지 도 8h는 크기 배경 ANN 모델 및 크기 일반 ANN 모델 중 어느 하나와 커버리지 배경 ANN 모델 및 커버리지 일반 ANN 모델 중 하나를 조합하여 도출한 도메인 밀도(EDD) 모델을 나타낸다. 상기 도 8e 내지 도 8h를 살펴보면, 도메인 밀도 계산시 그래핀 모양을 육각형으로 가정하여 편차가 약간 있었지만, 크기 및 커버리지 모두 배경 모델을 조합할 때 가장 설명 가능한 것을 확인하였다.

[0239] 도 9는 도메인 밀도, 커버리지, 크기에 대한 예측 값과 실험 값의 차이를 나타낸 그래프이다. 예측 값을 기반으로 한 Lasso 회귀 분석 결과(도 10 참조) 성장시간, 온도 어닐링 시간, 수소 공급 순으로 크기 및 커버리지에 대한 영향이 큰 것을 확인하였다.

[0240] 이후, 영향이 높은 온도 및 성장시간으로 예측 값을 시각화하였다. 이를 도 11에 도시하였다. 온도 및 성장시간이 증가함에 따라 그래핀 크기와 커버리지가 증가하고, 도메인 밀도가 감소한 것을 확인하였다. 그래핀 핵 생성 및 성장의 활성화 에너지는 각각 음수와 양수이므로, 온도가 상승하면 성장물이 높아지고 핵 생성물은 낮아진다. 결과적으로 온도가 높을수록 도메인 크기와 커버리지가 커지고 도메인 밀도가 낮아진다.

[0241] 어닐링 시간은 크기, 커버리지, 도메인 밀도 세가지 사양에 영향을 미치고, 어닐링은 그래핀이 아닌 기판에 영향을 미치므로 서로 상관 관계가 있다. 어닐링을 수행하면 Cu 포일의 불순물 농도가 감소한다. 또한, 핵 형성과 성장이 일어나는 Cu 표면의 결정도와 입자 크기가 증가하고 Cu 입자 경계 밀도가 감소한다. 이러한 불순물과 입계는 핵 형성 부위로 작용하기 때문에 어닐링 시간이 증가함에 따라 도메인 밀도가 감소한다.

[0242] 도 12a는 각각 다른 크기 이미지에 대한 R-CNN 검출 결과를 나타내고, 도 12b는 그 결과로부터 얻은 그래핀 검출 분포를 나타낸다. 상기 도 12a 및 12b에 따르면, 표준 편차도 증가함에 따라 검출된 입자의 육각형 크기가 증가하는 경향을 확인하였다. 결과적으로, 크기에 따른 편차를 설명하기 위해 또 다른 간단한 ANN을 개발하였다. 도 12c는 ANN 회귀 결과를 나타낸다. 이 ANN은 도 12c에 표시된 것처럼 훈련 및 테스트 데이터 모두에서 우수한 성능을 보여주었다. 성장 시간이 길수록 H2에 의한 2차 핵 형성과 그래핀 식각 효과로 인해 도메인 크기의 표준 편차가 증가하였다.

[0244] **SVM 모델 개발 및 평가**

[0245] 다른 사양과 달리 CVD 조건과의 관계가 명확하지 않아 중형비 모델 개발이 어려웠다. 그러나 상관관계는 비선형적이었지만, 고온 및 어닐링 시간에서 실험한 그래핀의 중형비가 전체 샘플의 평균값보다 작은 외부 경향(outward tendency)을 발견하였다. 일부 특이치를 허용하고 중형비를 회귀 문제가 아닌 분류 문제로 재정의한 다음 이진 분류를 위한 SVM (Support Vector Machine)을 개발하였다.

[0246] 도 13a는 전체 데이터 샘플에 대한 중형비를 나타낸 그래프이다. 도 13b는 평균을 기준으로 평균 아래(파란색)와 평균 위(빨간색)로 중형비를 분류한 그래프이다.

[0247] 본 발명의 일 실시예에서, SVM을 모델링 하기 전에 특성 선택(feature selection) 방법인 순차 순방향 선택(sequential forward selection)을 적용하였다. 도 14는 특성 선택 프로세스 및 선정된 특성으로 설계한 SVM 모델을 나타낸다.

[0248] 우선 단일 변수로만 설계된 SVM 모델은 k- 폴드 데이터 세트 (k=4, 32개 데이터 세트)에 대한 평균 예측 점수를

보여주고, 정확도가 가장 높은 특성(feature)이 가장 우세한 특성으로 선택된다. 본 연구에서 온도가 가장 우수한 특성으로 확인되었다. 다음으로, 온도와 다른 변수를 사용하여 3 개의 SVM을 다시 개발하여 영향력 있는 특성의 적절한 조합을 찾고 값을 비교하였다. 이 과정을 반복한 결과, 세 가지 특성을 선택한 경우(평균 정확도 70%)에서, 특히 온도와 어닐링 시간의 조합이 평균 정확도가 우수하였다.

[0249] 결과적으로 우리는 특성 선택에서 온도, 어닐링 시간 및 수소 공급을 포함하는 SVM 모델을 개발하였다. 그런 다음 하이퍼 파라미터를 추정하기 위한 획득 함수 (acquisition function)로 예상 개선 플러스를 사용하여 베이지안 최적화를 적용하여 최적의 $C(=0.004)$ 및 $\gamma(=22.63)$ 값을 찾았다. 최적화 결과 초평면은 32개 훈련 데이터를 78% 정확도로, 5개의 테스트 데이터를 80%의 정확도로 분할하였다.

[0250] 도 14의 3차원 SVM에 나타난 분류 결과는 CVD 시스템에서 더 높은 온도와 더 긴 어닐링 시간에서 그래핀이 훨씬 더 육각형으로 합성되는 것을 보여준다.

[0251] SVM에 의해 예측된 값이 평균보다 낮을 경우 모든 샘플의 평균값보다 낮은 샘플의 평균값과 편차가 이미지 생성에 반영된다. 그 반대도 같은 방식으로 고려된다.

[0253] C. 그래핀의 SEM 이미지 생성을 위한 머신러닝

[0254] 본 발명의 일 실시예에서는 예측된 그래핀 사양 (크기, 커버리지, 도메인 밀도, 크기 편차 및 종횡비)을 생성적 적대 신경망(GAN)을 기반으로 생성 모델을 적용하여 SEM 이미지 형태로 제공하고자 한다. 또한, 흑백이미지로 예측된 초기 이미지에 pix2pix를 적용하여 컬러 SEM 스타일을 부여한다.

[0255] 5가지 예측 결과 (크기, 커버리지, 도메인 밀도, 크기, 편차 및 종횡비)를 명확하게 표현하기 위해 단색(monochrome) SEM 이미지 형태로 정육각형 이미지에 가까운 그래핀 결정립들을 추출하였다. 그 다음, ANN에서 제공된 예측된 크기와 편차 및 특정 조건에서의 SVM의 종횡비를 기반으로 재구성한다. 그 다음, 특정 영역 내에서 예측된 도메인 밀도와 동일하게 결정립을 배열할 수 있다.

[0257] C.1 GAN 모델

[0258] 본 발명의 일 실시예에서는 그래핀 결정립 배열을 위해 다수의 결정립 생성이 필요하고 실제 SEM 이미지의 육각 그래핀 이미지는 제한적이므로 다양한 결정립 이미지를 생성 할 수 있는 GAN이라는 생성 모델을 개발하였다.

[0259] GAN은 타겟이 되는 레이블이 없는 학습 데이터로서 육각형 모양의 그래핀 입자 이미지만을 요하는 비지도 학습의 일종이다. GAN은 생성기와 감별기로 구성된다. 도 15는 생성기 및 감별기를 포함하는 GAN을 나타낸다. 생성기와 감별기로 컨볼루션 신경망을 선택했다.

[0260] 생성기는 간단한 1×50 입력 벡터(z)에서 SEM 이미지를 생성한다. convolution 연산의 반대인 deconvolution을 통해 차원을 확장한다. 결과적으로 이 생성된 이미지는 감별기를 통과한다. 감별기는 상술한 R-CNN의 CNN 구조와 유사한 구조를 가지고 있으며, convolution을 통해 이미지의 특성을 추출하여 원본 이미지 (x)와 생성된 이미지 (z)를 비교한다. 감별기의 관점에서, GAN은 최대화 된 값에 대해 하기 수학적 18에 의해 주어진 목적 함수를 구동하는 방향으로 훈련된다.

수학적 18

$$J = \min_G \max_D V(D, G) = E_{x \sim p_{data}(x)}[\log D(x)] + E_{z \sim p_z(z)}[\log(1 - D(G(z)))]$$

[0262]

[0263] 여기서, $D(x)$ 는 감별기가 실제 결정립 이미지를 적절하게 판별할 확률이고, $D(G(z))$ 는 생성된 가짜 이미지를 가짜 이미지로 분류할 확률이다. 이는, $D(x)$ 를 최대화하고 $D(G(z))$ 를 최소화하는 것을 의미하는 문제로 정의된다.

[0264] 초기 훈련 단계에서 판별기는 생성된 이미지를 가짜로 쉽게 인식하나, 생성기가 현재 감별기가 생성된 이미지를

구별하기 어려운 방향으로 학습하면 생성된 데이터 분포 (P_g)는 훈련이 진행됨에 따라 실제 데이터 분포 P_d 에 가까워진다. 결국, 학습을 충분히 반복하면 결국 $P_g = P_{data}$ 가되어 감별기가 둘을 구별 할 수 없어, 실제 이미지와 생성 이미지를 혼동한다. 이때 $D(x)$ 와 $D(G(z))$ 는 이상적인 경우 1/2 앞으로 이동하고, 동시에 GAN은 컨볼루션 커널 자체를 학습하고 갱신한다.

[0265] 본 발명의 일 실시예에서는, GAN의 효과적인 학습을 위해 기울기 운동량(gradient momentum)과 커널 업데이트를 위한 적응형 학습률(adaptive learning rate)을 포함하는 Adam 최적화 프로그램을 선택했다.

[0267] C.2 Pix2pix 모델

[0268] 또한, 본 발명의 일 실시예에서는, 실험 SEM 이미지에서와 동일한 이미지 색상과 전망을 얻기 위해 Pix2Pix 모델을 개발하여 단색 이미지를 실제 색상 SEM 이미지로 변환하였다. 또한 훈련된 또 다른 Pix2Pix 모델을 사용하여 캡처된 그래핀을 수정하였다.

[0269] 본 발명의 일 실시예에 사용된 Pix2pix 모델은 GAN과 구조가 유사하지만 생성기용 인코더-디코더 형태로 U-net을 채택한다. Convolution을 통해 입력 이미지를 분해하는 feature에서 trans-convolution을 통해 SEM 이미지와 유사한 컬러 이미지를 생성할 때, 이 과정은 같은 위치에 해당하는 레이어 간 연결인 skip connection을 통해 U-net의 도움을 받는다. U-net은 위치 정보를 보존하여 변환된 이미지의 해상도를 향상시킨다.

[0270] Pix2Pix 훈련을 위해 입력되는 랜덤 노이즈 벡터 (z)는 실제 흑백 SEM 이미지 (x)가 사전 처리되어 실제 R-CNN 측정에 사용되는 U-net을 통과한다.

[0271] 판별기는 실제 컬러 SEM 이미지 (y)를 참으로 분류하기 때문에 SEM 컬러 이미지로 변환되지 않은 이미지를 거짓 이미지로 선택할 것이다. 따라서 생성기는 감별기를 속이기 위해 노이즈 벡터 (z)에 흑백 이미지 정보를 추가하여 SEM 스타일 이미지 ($G(x, z)$)를 생성한다.

[0272] Pix2pix의 학습 원리는 GAN의 학습 원리와 유사하다. 다만, 흑백 이미지가 조건으로 포함되어 있다는 점을 고려하여, Pix2Pix는 조건부 GAN 손실(conditional GAN loss)을 사용하는데, 이는 약간 수정된 GAN 손실(slightly modified GAN loss)로 정의되고 이는 하기의 수학적 식 19와 같다.

[0273] 그러나 생성기의 궁극적인 관심은 감별기를 속이는 것뿐이므로 변환할 정보인 x 는 상대적으로 덜 반영될 수 있다. 따라서 Pix2Pix의 목적 함수는 변환된 이미지 $G(x, z)$ 와 실제 SEM 이미지 (y)를 유클리드 거리를 통해 직접 비교하는, 하기의 수학적 식 22로 표현된 L1 손실을 더하여 정의된다.

[0274] Pix2Pix 모델은 하기의 수학적 식 23에 의해 주어진 목적 함수의 최적화를 위해 훈련한다. 그 다음 Adam 최적화기(Adam optimizer)를 사용하여 SEM 스타일을 변환하기 위해 각 구조에 필요한 하이퍼 파라미터를 갱신한다.

수학적 식 19

$$L_{cGAN}(G, D) = E_{x,y}[\log D(x, y)] + E_{x,z}[\log(1 - D(G(x, z)))]$$

[0276]

수학적 식 20

$$L_{L1}(G) = E_{x,y,z}[\|y - G(x, z)\|_1]$$

[0278]

수학식 21

$$\text{object function} = \arg \min_G \max_D L_{cGAN}(G, D) + \lambda L_{L1}(G)$$

[0280]

[0282] C.3 결과

[0283]

이미지를 생성하기 위한 GAN 모델이 개발되었다. 도 16은 GAN의 훈련 과정을 나타낸다. GAN을 훈련하는 동안 생성기와 감별기에 대한 확률 변동을 관찰하였다. 처음에는 시간이 지남에 따라 글로벌 최적성을 위해 0.5로 이동하였으나 학습이 진행됨에 따라 발산하는 경향을 보였다. 각 Epoch 횟수에서 이미지가 얼마나 선명한 지에 대한 성능과 확률을 비교하여 약 700 Epoch에서 선택된 GAN 모델의 훈련을 중지하였다. 이는 모든 훈련 이미지가 커널을 업데이트하고 목적 함수를 튜닝하는데 700번 사용되었음을 의미한다. 약 300 epoch에서 훈련된 모델이 확률을 0.5에 가깝게 수렴하였으나, 700 epoch에서 생성된 이미지가 더 명확한 경계와 모양을 보였다.

[0285]

GAN 모델링 후 추출된 생성기는 단일 육각형 결정립 이미지를 생성하였다. 특정 합성 조건에서 ANN 모델에서 예측한 특정 도메인 밀도까지 결정립을 생성하였다. 그 다음 이 육각형 입자는 도메인 밀도와 상관 관계로 인해 예측된 커버리지를 가능한 유지하면서, 반복을 통해 모델의 크기, 크기 편차 및 종횡비를 기반으로 재조정되었다.

[0286]

도 17a는 생성된 거친 결정립이 배열되고 회전된 이미지를 나타내고, 도 17b는 그 648×960 크기로 잘린 이미지를 나타낸다. 도 17c는 HMRFM에 의해 노이즈 개선된 이미지를 나타낸다. 도 17d는 Pix2pix에 의해 SEM 스타일이 부여된 이미지를 나타낸다.

[0287]

도 17a 내지 도 17d를 살펴보면, 먼저 사실적인 이미지를 위해 입자를 약간 겹쳐서 특정 각도로 회전하고 무작위로 배경에 놓도록 하였고(도 17a 참조), 그 이후 648×960 크기로 크로핑하였다(도 17b 참조). 다만, 생성된 그래핀의 크기를 경계와 중첩하여 재조정하는 과정에서 약간의 노이즈가 관찰되었고, 이는 HMRFM(hidden Markov random field algorithm)에 의해 수정되었다(도 17c 참조). 수치 결과를 흑백 SEM 이미지로 표현할 수 있다.

[0288]

마지막으로, Pix2Pix의 전체 목적 함수의 크기와 변동이 감소하고 각 손실 함수가 수렴됨에 따라 안정화되는 것을 확인하였다. 생성된 이미지가 원본 SEM 이미지와 근접하였다. 예측 이미지의 형태를 흑백으로 유지하면서 SEM 스타일로 이미지를 변환하여 사실적인 이미지를 생성할 수 있었다(도 17d 참조).

[0290] D. 구축된 머신러닝 모델을 이용한 CVD 조건에 따른 그래핀 사양 예측

[0291]

새로운 조건에서 5 개의 추가 CVD 실험을 수행하여 개발한 모델이 합성되는 그래핀의 이미지를 얼마나 잘 예측하고 생성하는지 확인하였다.

[0292]

시뮬레이션을 통해 5개 각 실험에 대한 예측 SEM 이미지를 얻었다. 그 결과를 도 18에 나타내었다. 도 18은 개발된 모델에 의해 예측된 SEM 이미지를 나타낸다. 결과적으로 예측 이미지는 실제 이미지와 근접한 형태를 나타내었고 예측 값을 잘 반영하는 것으로 나타났다.

[0293]

또한 R-CNN을 사용하여 합성된 그래핀의 사양을 다시 측정하여 이미지의 신뢰성을 확인하고 하기 표 1에 기재된 바와 같이 실제 값과 비교하였다. 모델링의 한계로 인해 실제 값과 약간의 차이가 있었지만 각 사양은 예측 값과 유사한 값을 가졌다. 결과적으로 모델의 오차, 각 값의 편차, 이미지 생성의 확률적 부분을 고려하여 대리 모델이 나타내는 수치 결과를 시각화된 이미지로 예측할 수 있었다.

[0294]

[0295]

또한 도 19는 온도(a), 성장시간(b) 변화에 따른 그래핀의 사양 변화를 보여주며 이를 통해 각 변수들이 그래핀의 사양에 미치는 영향을 시각적으로 확인할 수 있었다.

- [0296] 또한 그래핀의 상업화를 위해서 그래핀은 낮은 도메인 밀도와 큰 크기를 가져야 한다. 수소의 에칭 효과와 함께, 높은 온도에서 성장시간이 길어질수록 도메인 밀도는 낮아지고 크기는 증가하는 경향성을 가지지만, 커진 그래핀들이 합쳐짐으로써 그래인 바운더리와 같은 결함들이 발생한다. 따라서, 이렇게 생성되는 그래인 바운더리를 크기 및 도메인 밀도와 함께 고려해야 한다.
- [0297] CVD의 각 조건들을 특정한 구간으로 나눈 후, 960번의 탐색 탐색(grid search)을 통해 시뮬레이션을 진행함으로써 큰 크기, 낮은 도메인 밀도, 그리고 그래인 바운더리가 적은 합성 조건을 제시 할 수 있었다.
- [0298] 도 20은 시뮬레이션로부터 얻은 최적의 결과를 보여주며, 이 때, 제시된 합성 조건은 수소의 공급과 함께 온도는 1040℃, 성장 시간은 15분, 어닐링 타임(annealing time)은 65분을 보여준다.

표 1

Experimental condition				Specification				
Temperature [°C]	Annealing time [min]	Growth time [min]	Supply of H2		Size	Coverage	Domain density	Aspect ratio
1010	65	5	X	Experimental	1.28	4.91	0.0334	1.43
				Predicted	2.02	0.47	0.0257	1.33
				R-CNN measured	2.14	9.08	0.0305	1.26
1030	35	15	X	experimental	5.25	53.15	0.0336	1.51
				predicted	4.73	58.14	0.0412	1.33
				R-CNN	4.4	55.65	0.0442	1.42
1030	65	15	O	experimental	6.44	53.98	0.0249	1.39
				predicted	6.40	55.47	0.022	1.52
				R-CNN	6.19	54.62	0.0219	1.62
1050	15	10	O	experimental	3.69	42.70	0.0376	1.34
				predicted	3.64	32.70	0.0363	1.33
				R-CNN	3.60	33.98	0.4030	1.38
1050	65	10	O	experimental	5.06	48.34	0.0231	1.33
				predicted	5.53	38.59	0.0185	1.52
				R-CNN	5.32	37.91	0.0206	1.55

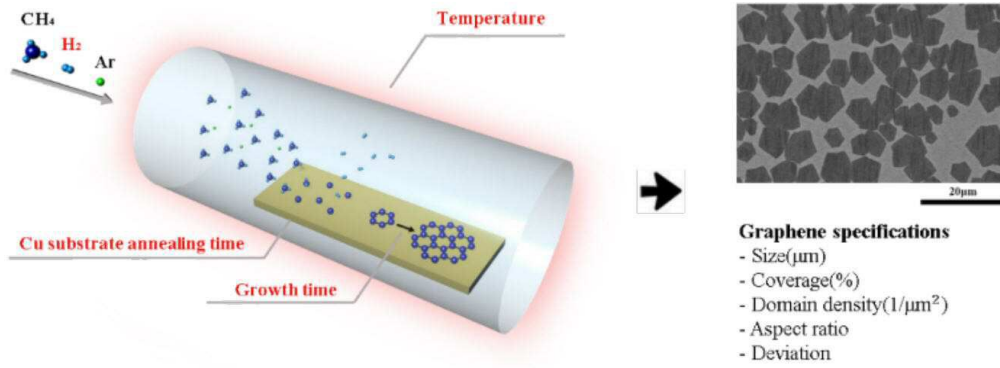
[0300]

- [0302] 이상의 설명은 본 발명의 기술 사상을 예시적으로 설명한 것에 불과한 것으로, 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 사람이라면 본 발명의 본질적인 특성에서 벗어나지 않는 범위에서 다양한 수정 및 변형이 가능할 것이다. 따라서, 본 발명에 개시된 실시예들은 본 발명의 기술 사상을 한정하기 위한 것이 아니라 설명하기 위한 것이고, 이러한 실시예에 의하여 본 발명의 기술 사상의 범위가 한정되는 것은 아니다. 본 발명의 보호 범위는 아래의 청구범위에 의하여 해석되어야 하며, 그와 동등한 범위 내에 있는 모든 기술 사상은 본 발명의 권리범위에 포함되는 것으로 해석되어야 할 것이다.

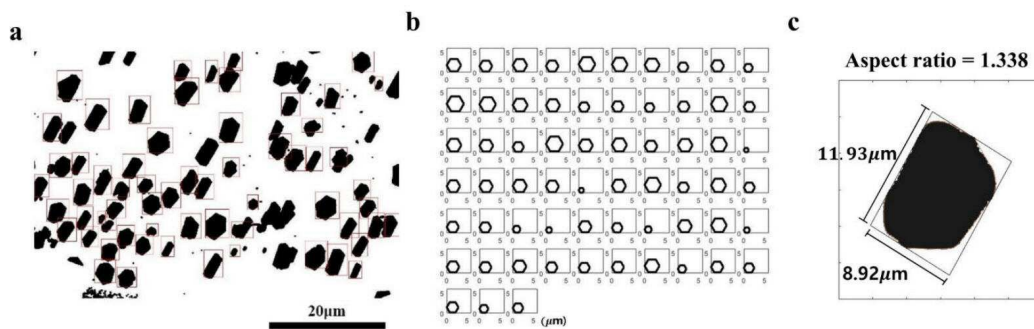
부호의 설명

도면

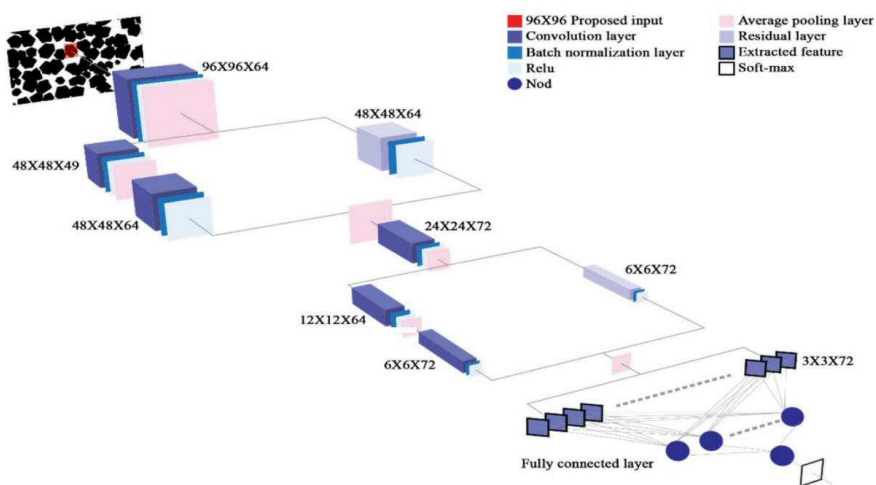
도면1



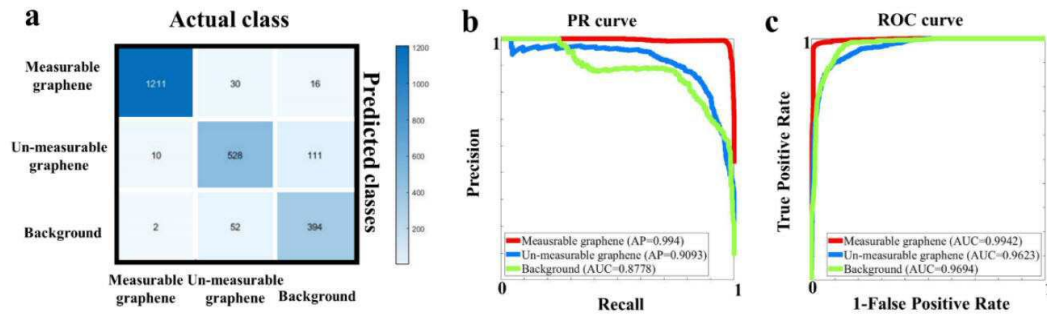
도면2



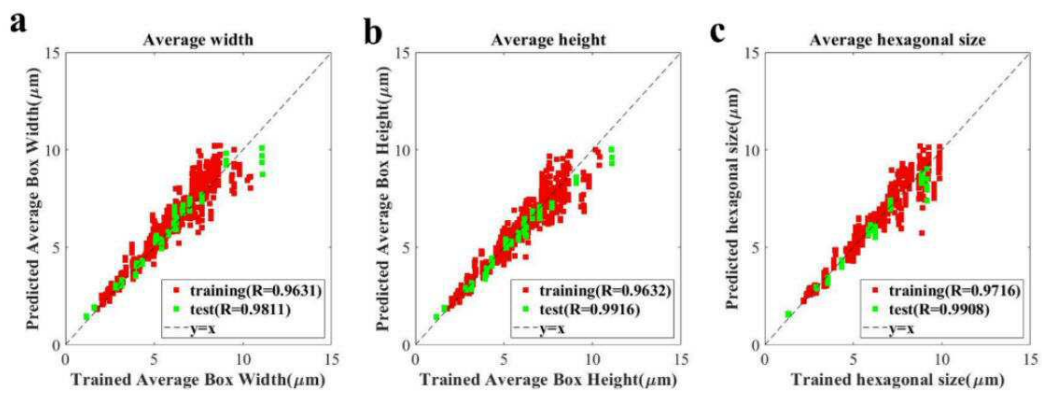
도면3



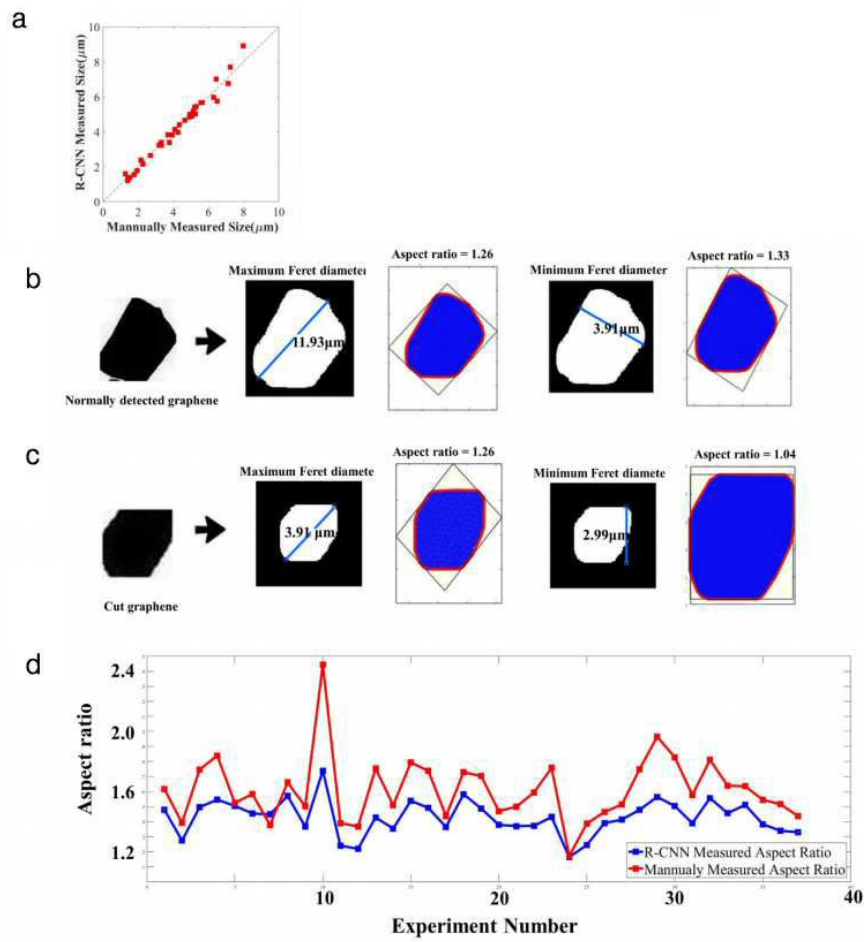
도면4



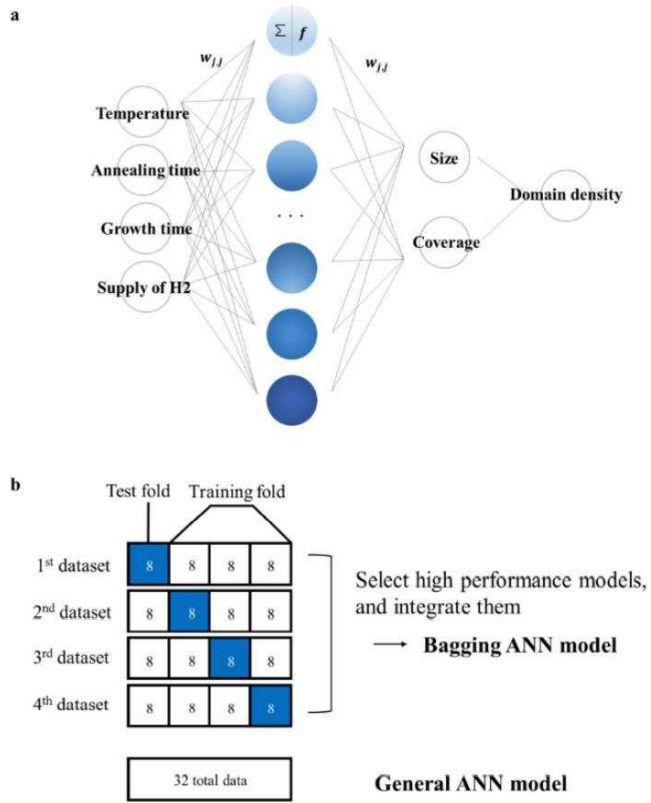
도면5



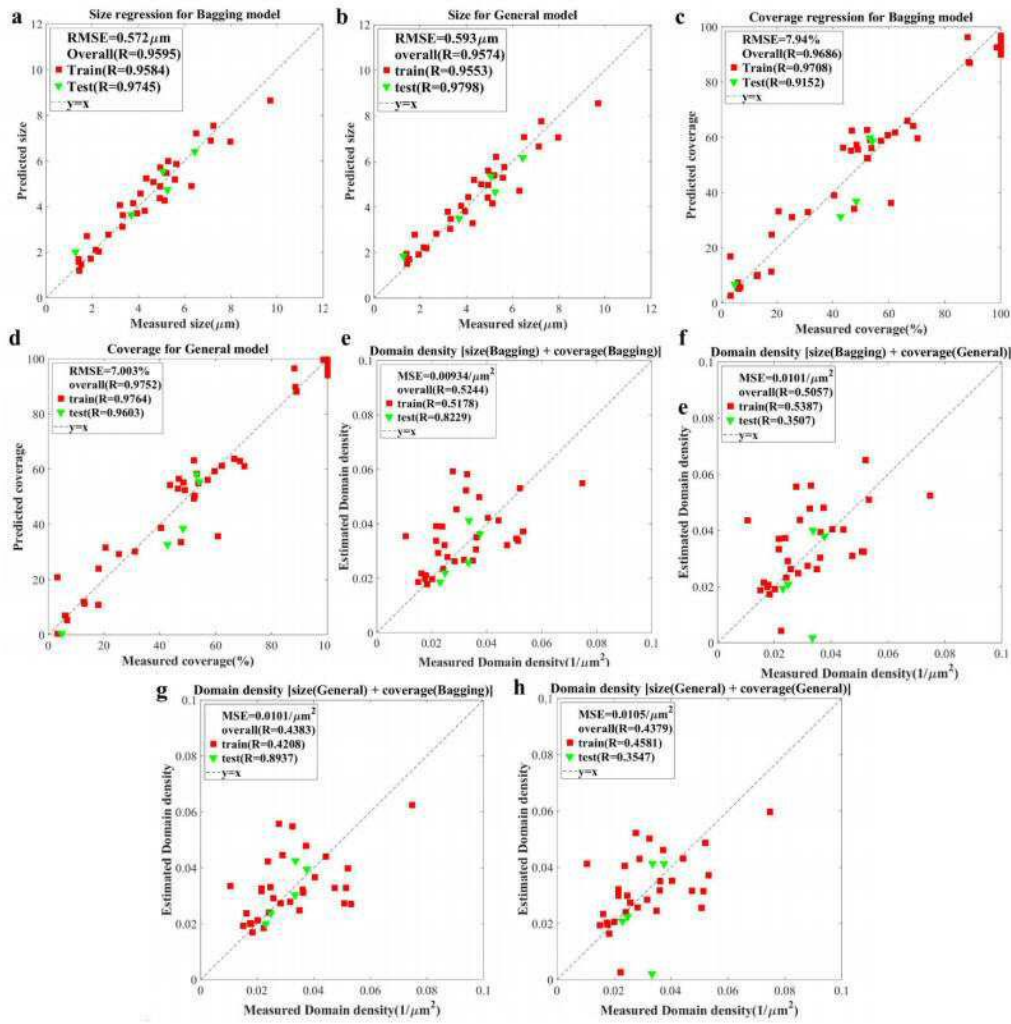
도면6



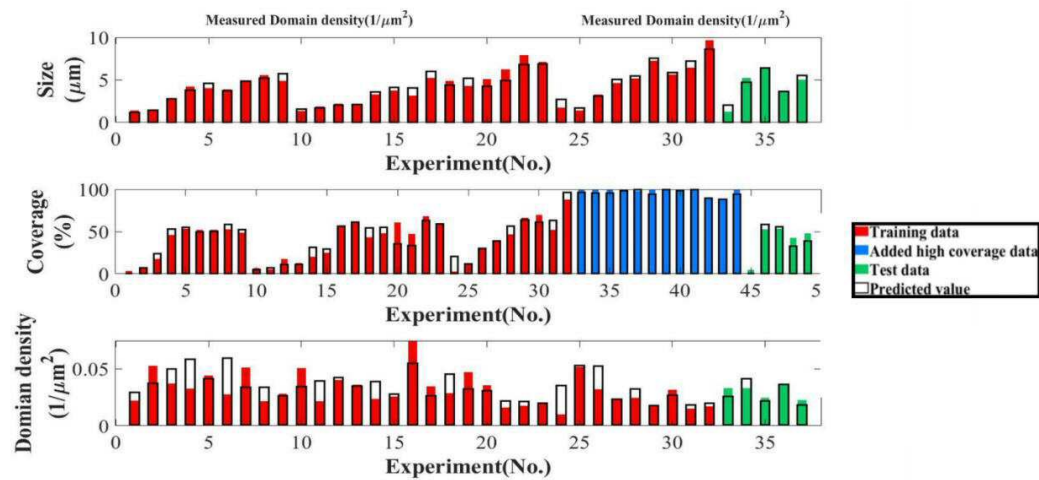
도면7



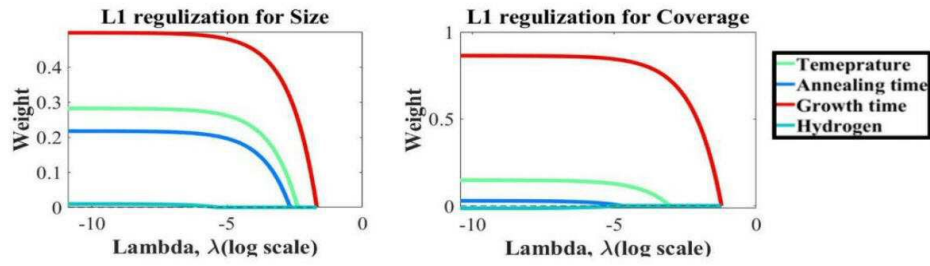
도면8



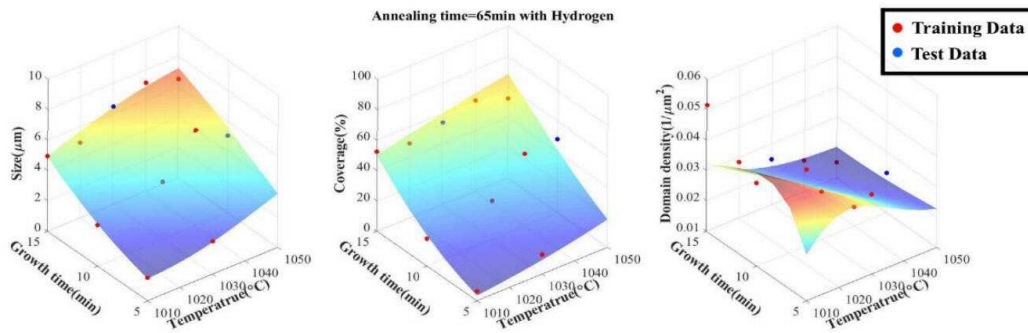
도면9



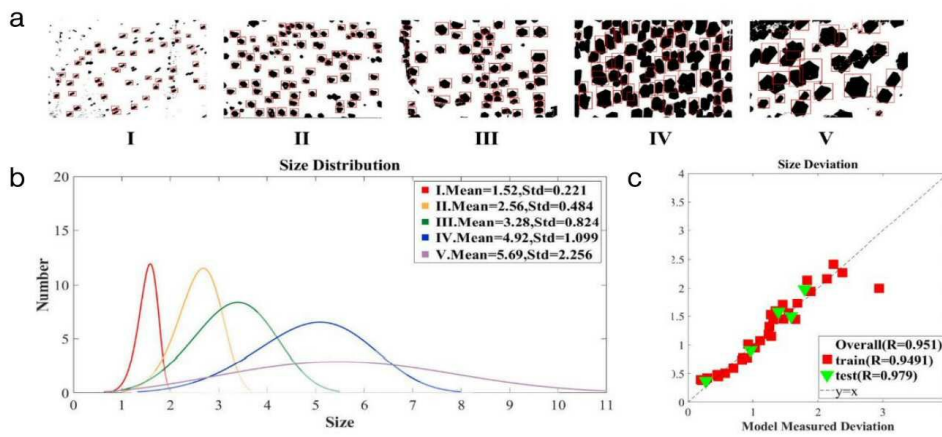
도면10



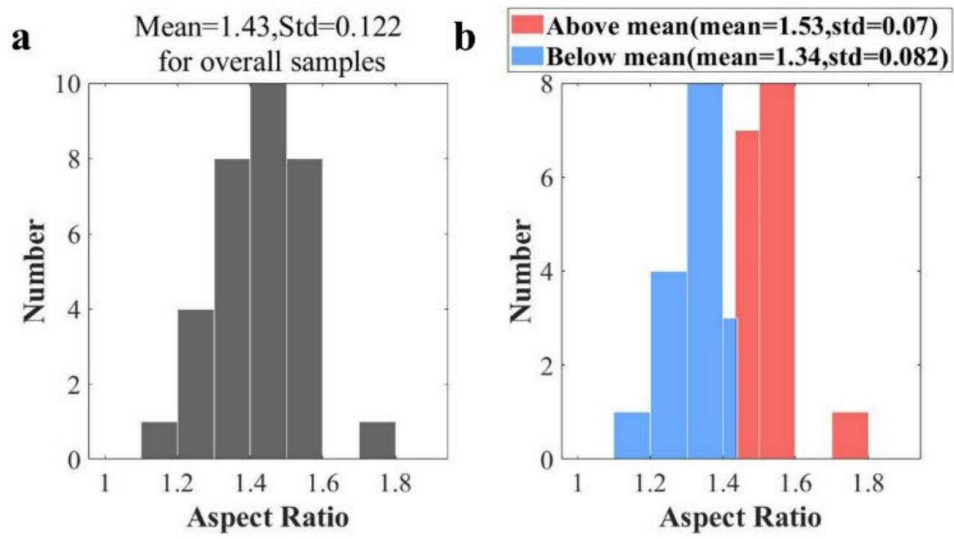
도면11



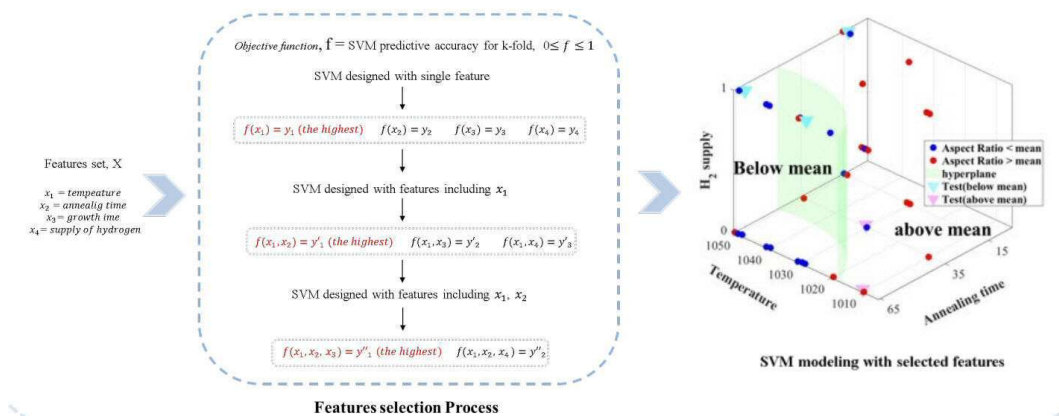
도면12



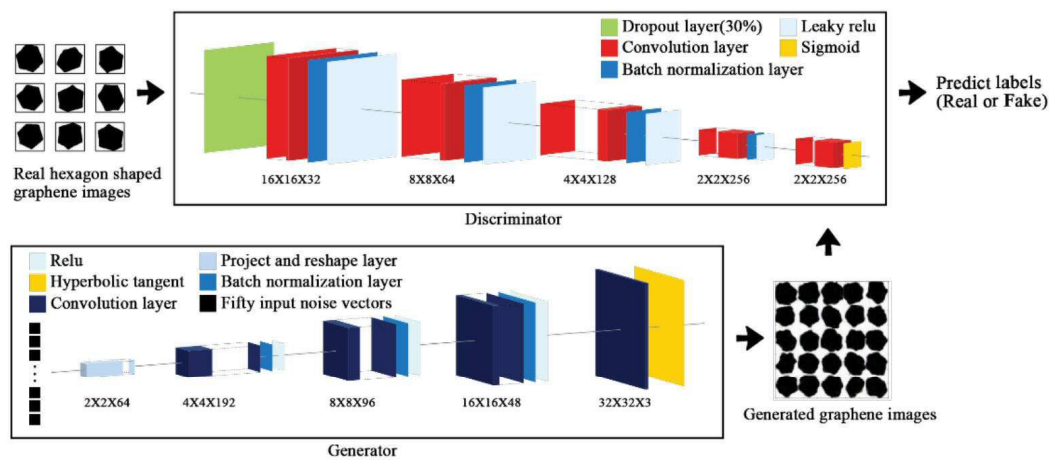
도면13



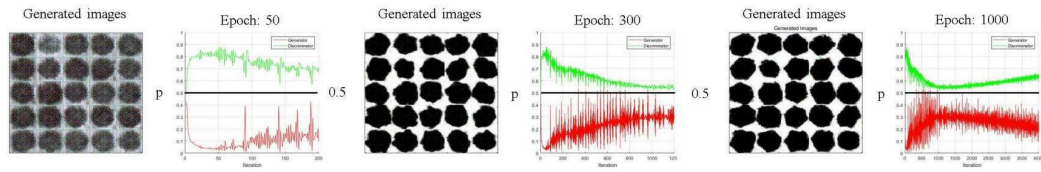
도면14



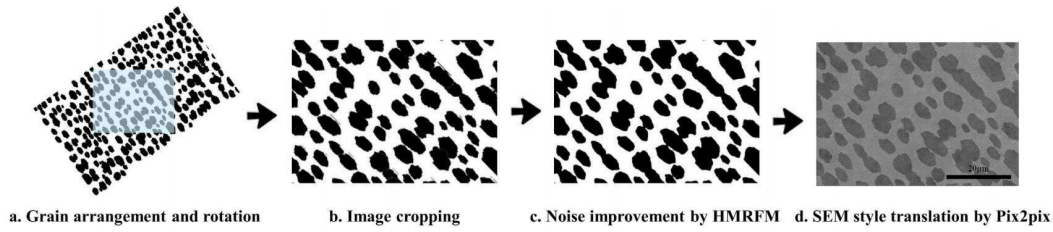
도면15



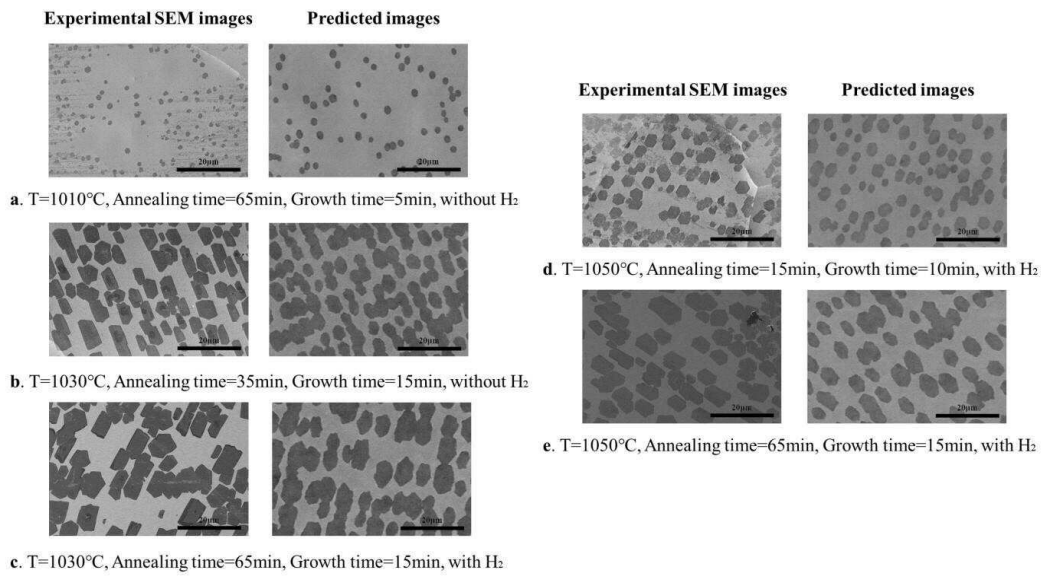
도면16



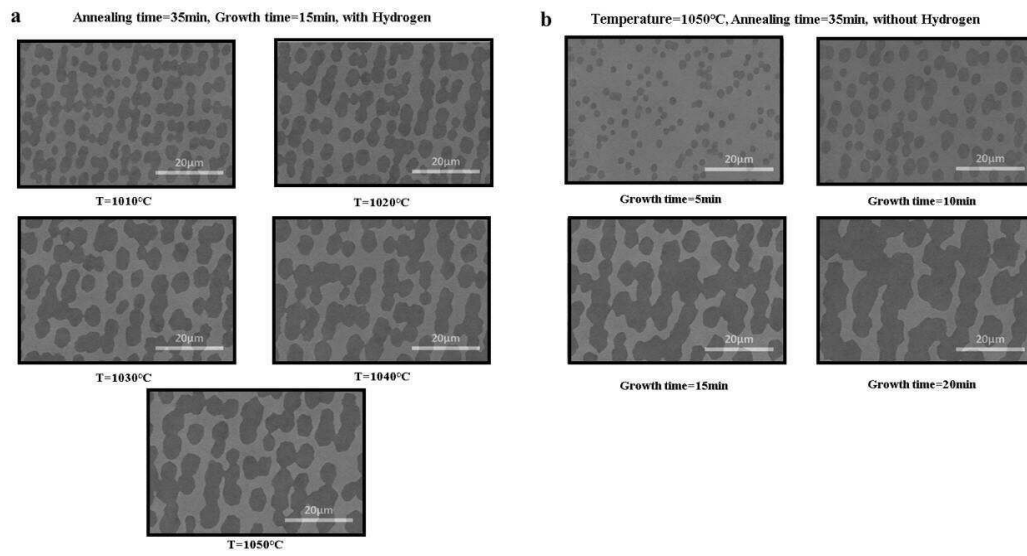
도면17



도면18



도면19



도면20

