

Sintering process optimization of ZnO varistor materials by machine learning based metamodel

Boyeol Kim*, Ga Won Seo***, Manjin Ha*, Youn-Woo Hong* and Chan-Yeup Chung***,†

*Virtual Engineering Center, Korea Institute of Ceramic Engineering & Technology, Jinju 52851, Korea

**Dept. of Materials Science and Engineering, Korea University, Seoul 02841, Korea

***Technology Convergence Division, Korea Institute of Ceramic Engineering & Technology, Jinju 52851, Korea

(Received October 20, 2021)

(Revised October 27, 2021)

(Accepted November 4, 2021)

Abstract ZnO varistor is a semiconductor device which can serve to protect the circuit from surge voltage because its non-linear I-V characteristics by controlling the microstructure of grain and grain boundaries. In order to obtain desired electrical properties, it is important to control microstructure evolution during the sintering process. In this research, we defined a dataset composed of process conditions of sintering and relative permittivity of sintered body, and collected experimental dataset with DOE. Meta-models can predict permittivity were developed by learning the collected experimental dataset on various machine learning algorithms. By utilizing the meta-model, we can derive optimized sintering conditions that could show the maximum permittivity from the numerical-based HMA (Hybrid Metaheuristic Algorithm) optimization algorithm. It is possible to search the optimal process conditions with minimum number of experiments if meta-model-based optimization is applied to ceramic processing.

Key words ZnO varistor, Sintering process, Process optimization, DOE, Machine learning, Ensemble decision tree

기계학습 기반의 메타모델을 활용한 ZnO 바리스터 소결 공정 최적화 연구

김보열*, 서가원***, 하만진*, 홍연우*, 정찬엽***,†

*한국세라믹기술원 가상공학센터, 진주, 52851

**고려대학교 신소재공학과, 서울, 02841

***한국세라믹기술원 융합기술사업단, 진주, 52851

(2021년 10월 20일 접수)

(2021년 10월 27일 심사완료)

(2021년 11월 4일 게재확정)

요약 ZnO 바리스터는 다결정구조를 가지는 반도체 소자로 결정립과 입계의 미세구조 제어를 통해 비선형적인 전류/전압 특성을 가지기 때문에 서지(surge)전압으로부터 회로를 보호하는 역할을 한다. 이러한 ZnO 바리스터에서 원하는 전기적 물성을 얻기 위해서는 소결 공정에서 미세구조의 제어가 중요하다. 따라서 소결 공정에서 중요한 변수들과 소결체의 전기적 물성인 유전율로 구성된 데이터셋을 정의한 후 실험계획법 기반으로 데이터를 수집했다. 수집된 실험데이터셋을 기계학습 알고리즘에 학습하여 메타모델을 개발했고, 개발된 메타모델에 수치기반 최적화 알고리즘인 HMA(Hybrid Metaheuristic Algorithm)를 적용하여 최대 유전율을 가질 수 있는 공정조건을 도출했다. 이러한 메타모델 기반의 최적화를 다변수 시스템인 세라믹공정에 적용한다면 최소한의 실험만으로 최적 공정조건 탐색이 가능할 것으로 판단된다.

1. 서론

ZnO 바리스터는 다결정구조를 가지는 반도체 소자로 ZnO 소재의 결정립과 입계의 미세구조에 기인한 비선형

적인 전류/전압 특성을 보이기 때문에 서지(surge) 전압으로부터 회로를 보호하는 역할을 한다[1-3]. 비선형적인 전류/전압 특성을 가지기 위해 Bi₂O₃, Sb₂O₃ 등의 산화물을 첨가하여 부도체인 ZnO 입계에 이차상(secondary phases)을 형성한다[4]. 하지만 이러한 미세구조 제어를 통해 원하는 전기적 물성을 얻기 위해서는 소결 공정이 매우 중요하다[5]. 소결 공정에서 여러 변수 중 일반적

†Corresponding author

E-mail: chanyeup@kicet.re.kr

으로 소결 온도가 바리스터의 전기적 물성에 큰 영향을 주는 것은 잘 알려져 있지만 소결 시간, 냉각속도 등 다른 공정변수들이 동시에 변할 때 ZnO 바리스터의 전기적 물성이 어떻게 변할지 직관적으로 예측하기는 어렵다. 변수가 다양한 시스템에서 최적해를 구하기 위해서는 수많은 반복 실험이 필요하지만 DOE(Design of Experiment)와 메타모델을 활용한 최적설계 기법은 최소한의 실험만으로 최적해를 구할 수 있어 공학문제 해결에 많이 활용중이며 이를 세라믹 바리스터 소결 공정에 활용하고자 한다.

본 연구에서는 최적설계 기법을 도입하여 다양한 소결 공정 변수가 존재하는 다변수시스템에서 유전율에 해당되는 목적함수의 최대값을 얻기 위해 수치 기반의 최적화 알고리즘을 활용하였으며 유전율을 극대화하는 소결 공정 조건을 탐색하였다. 이를 위해 DOE 기반의 실험 데이터를 수집한 후 기계학습 모델에 학습을 시켜 각 소결 공정 변수를 입력하면 유전율을 예측하게 해주는 메타모델을 개발했다. 이 메타모델을 활용하여 소결 공정에서의 주요 변수를 상하한 범위 내에서 변화시키면서 출력 값으로 얻어지는 유전율의 변화 경향 추이에 따라 최대값을 얻을 수 있는 최적화를 수행했다. 그리고 최적

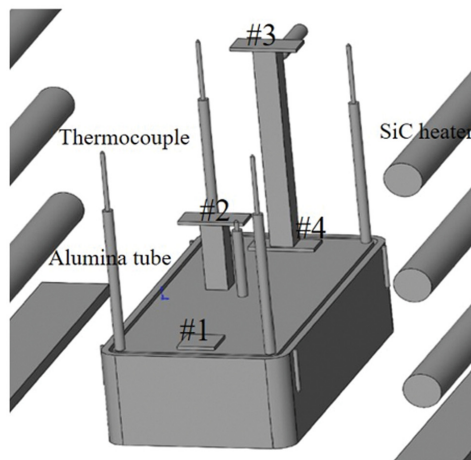
화된 공정 변수와 이 때 예측된 유전율을 검증하기 위해 동일조건을 검증실험을 수행하여 측정된 유전율과 비교하였다.

2. 실험 방법

본 연구에 사용된 ZnO 바리스터 유전체의 경우 96.9 mol% ZnO, 1.0 mol% Zn_2BiVO_6 , 0.5 mol% Co_3O_4 , 0.1 mol% Cr_2O_3 , 0.5 mol% $CaCO_3$, 1 mol% Sb_2O_3 첨가제를 사용한 조성으로 150 rpm 조건으로 20시간 불밀 공정을 통해 슬러리를 제작했다. 혼합된 슬러리를 100°C 조건으로 10시간 건조 후 막자사발에 유발 후 지름 10 mm 금형에 넣고 50 MPa 조건으로 1축 가압하여 성형체를 제조한 후 다양한 조건에 따라 소결을 진행했다. 소결이 끝난 소결체의 경우 1.0 mm 두께로 연마한 다음, 표면에 전극형성을 위해 Ag 페이스트를 도포 후 550°C 온도에서 10 min 동안 열처리하여 유전특성을 평가했다. 전극이 도포된 소결체의 유전율은 HP-4194A 기기를 사용하여 1 kHz 주파수 영역에서의 측정값을 Cp-D 법[3]을 통해 계산하였다. 이 때 소결 공정을 제외한 모든 공



(a)



(b)

Fig. 1. (a) Box-type furnace setup to measure temperature using 10 thermocouples and data logging interface with laptop during sintering process (b) Four different ZnO varistor sample positions (#1~#4) in the furnace.

Table 1

Measured temperature at 4 different sample positions during sintering process with 900~1200°C sintering temperature, 60 min sintering time, 5°C/min heating rate and 5°C/min cooling rate

Setting Temp. [°C]	Measured temp. [°C]			
	#1	#2	#3	#4
900	923.5	927	924	912.5
1000	1024.5	1027	1025	1015
1100	1125.5	1128	1124	1118
1200	1230.5	1233	1230	1223.5
Average for difference between setting and measured temp.	26	28.75	25.75	17.25

Table 2

Processing variables, their type and Min./Max. values using in DOE

Processing variables	Type (Continuous or discrete)	Min. values	Max. values
Sintering temperature [°C]	continuous	900	1200
Sintering time [min]	continuous	0	600
Heating rate [°C/min]	continuous	1.0	7.0
Cooling rate [°C/min]	continuous	1.0	7.0

정과 유전을 측정방법은 모두 동일하게 유지했다.

박스타입 소결로 내부의 실제 온도를 측정하기 위해 Fig. 1과 같이 알루미늄 튜브 내에 열전대를 넣어 총 10개 지점에서의 온도를 측정했다. 시간에 따른 온도를 자동 수집하기 위해 NI9123과 cDAQ Data Logger 프로그램을 사용했다. 소결 시간 60 min, 승온속도 5°C/min, 냉각속도 5°C/min 조건을 고정한 채 소결 온도를 900°C에서 1200°C까지 100°C 간격으로 증가시키면서 소결로 내부의 온도를 기록한 후 설정 값과의 차이를 관찰했다. Table 1에서 보이는 바와 같이 소결로 내 위치에 따라 온도 설정 값과 열전대를 통해 실제로 측정된 값은 17.25~28.75°C 정도의 차이를 보였다.

3. 최적화 방법론

ZnO 바리스터 유전체의 소결 공정에서 최종 물성에 가장 큰 영향을 미치는 4개 공정변수 - 소결 온도, 소결 시간, 승온속도, 냉각속도 - 를 정의하고, 목적함수로 유전을 정의했다. 즉, 1개의 데이터셋(dataset)은 4개의 공정변수와 1개의 목적함수로 구성된다. 바리스터 유전체에서 가장 중요한 물성은 유전율과 비선형계수로 두 개 물성이 비교적 정비례 관계를 가지는 경우가 많아 목적함수로 유전율만을 채택했다. 가급적 적은 수의 데이터셋으로 메타모델을 개발하기 위해 각 공정변수들의 상하한 범위를 최대, 최소로 가지는 다차원 공간에서 직교성(orthogonality)을 유지하면서 잘 분산된 실험점을 생성하기 위해 실험계획법 기반의 데이터 수집 계획을 수립했다. 소결 시간

에 따라 시편 제작에서 물성평가에까지 소요되는 시간은 1~4일로 공정최적화를 위해 주어진 시간 내에 많은 실험점을 확보하기 어려워 DOE 기반의 실험 설계를 통한 실험점의 최소화가 중요하다. 적은 수의 데이터를 활용하여 정확도가 높은 메타모델을 만들기 위해서는 각 공정변수들의 상/하한값 범위 내 실험점을 균일하게 퍼트리는데 것이 반드시 필요하다. 이에 공간 충전(Space-filling property)이 우수한 Optimal Latin Hypercube Design (OLHD)[6] 법으로 72개 실험점을 생성했다. 소결 공정에서 각 변수의 상/하한 범위는 Table 2에 나타나 있다.

열전대를 이용한 온도수집 결과 소결 장치 내 4개 서로 다른 위치 별로 셋팅 온도 대비 약 17.25~28.75°C 만큼의 온도 증가가 관찰되어 4개의 서로 다른 시편위치에서 소결할 경우 소결 시간, 승온속도, 냉각속도는 같지만 소결 온도가 서로 다른 4개의 데이터셋을 얻을 수 있다. 따라서 OLHD 법으로 생성한 72개 데이터셋의 4배인 총 288개 데이터셋을 수집할 수 있다. 소결 공정 조건이 동일한 시료 2개를 동시에 제작한 후 각 시료의 유전을 평균값을 데이터셋에 입력했다.

288개 소결 공정 변수와 유전율에 대한 데이터셋을 Ensemble Decision Tree(EDT)[7], Multi-layer Perceptron (MLP)[8] 등의 기계학습 모델에 학습시켜 가장 높은 예측 정확도를 보이는 기계학습 알고리즘 기반의 메타모델을 만든 후 이 메타모델을 이용하여 최대 유전율을 나타낼 수 있는 각 공정변수의 최적 값을 도출했다. 이 최적화 프로세스는 Fig. 2과 같다. 이러한 메타모델 개발 및 수치적 알고리즘 기반의 최적화는 PIA_{NO} 코드[9]를 통해 수행되었다.

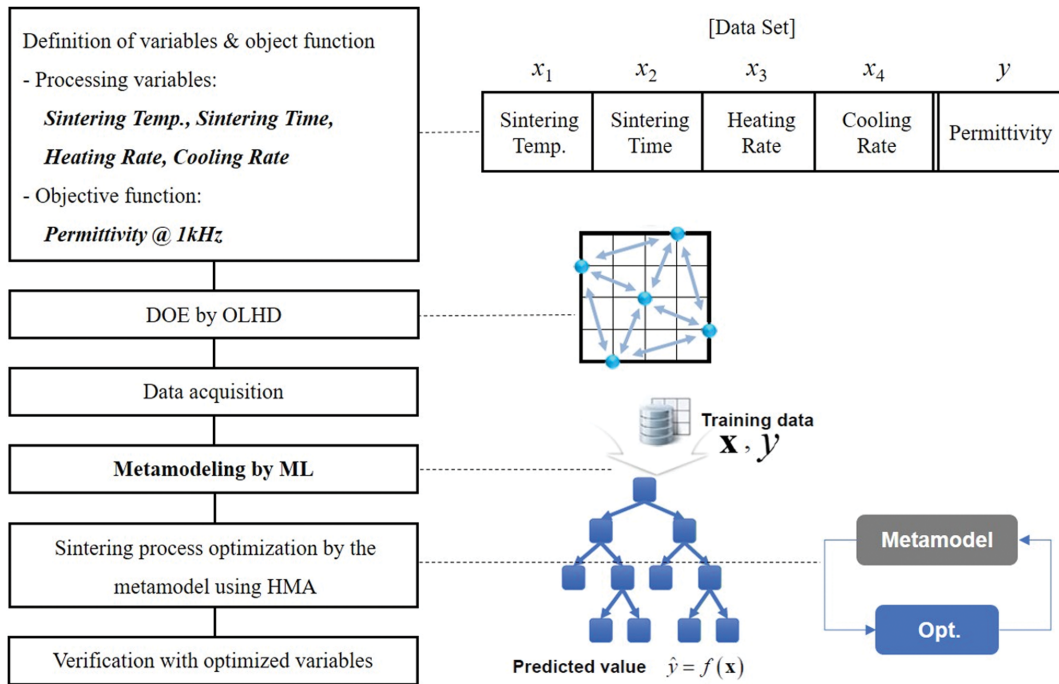


Fig. 2. Optimization procedure with DOE and ML based metamodeling.

4. 결과 및 토론

ZnO 바리스터 유전체 소결 공정에서 수집된 288개 데이터셋을 구성하는 총 1440개 데이터를 분석한 결과

Fig. 3의 그래프와 같이 유전율과 소결 온도 사이에 강한 선형 관계를 보여 높은 소결 온도에서 소결한 바리스터 유전체가 비교적 높은 유전율을 보였다. 소결 시간의 경우 측정된 유전율과 ‘W’자형 곡선의 관계를 보여 짧은 소결

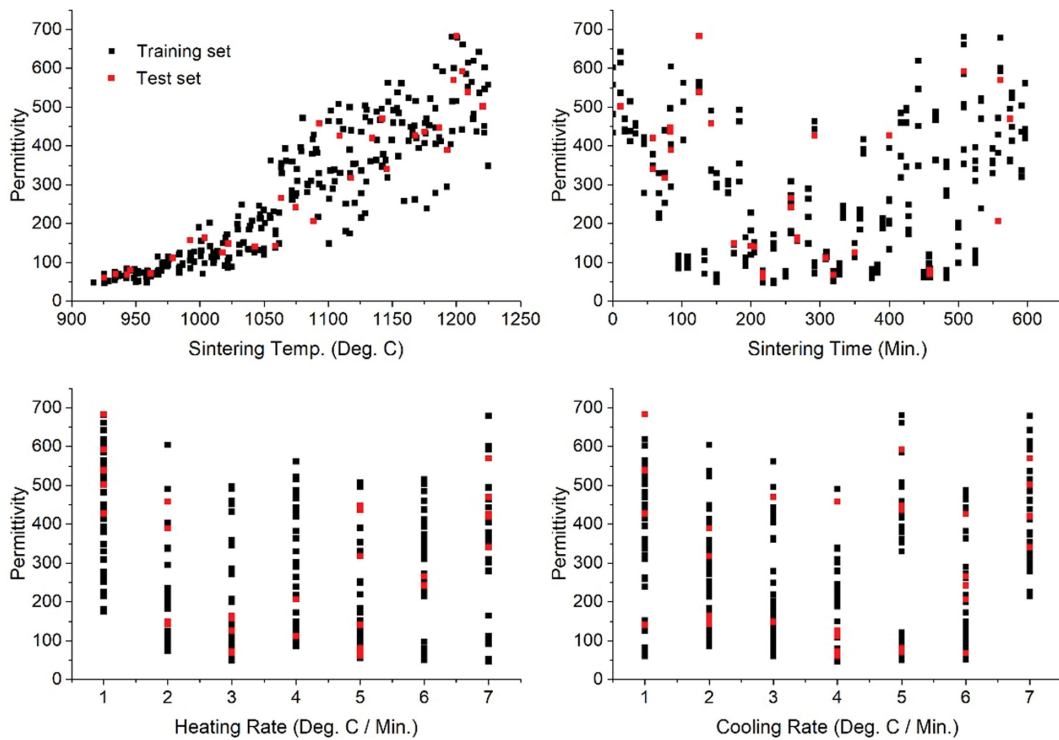


Fig. 3. Correlation plots among each variable and measured permittivity in sintering process.

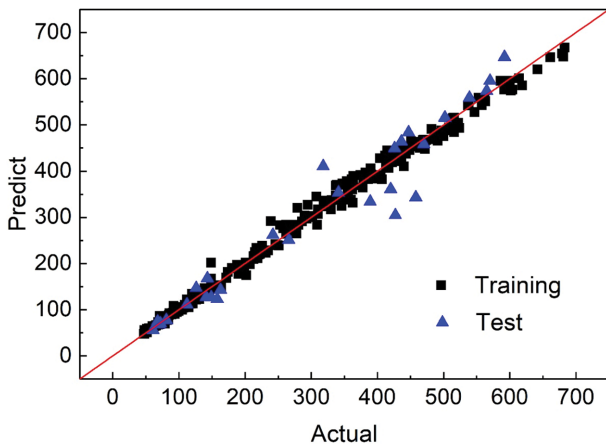


Fig. 4. Predicted and actual permittivity for training and test data from the EDT based metamodel.

시간과 긴 소결 시간에서 상대적으로 높은 유전율을 보였다. 승온속도와 냉각속도의 경우 유전을 사이에서 특별한 상관관계가 관찰되지 않았다. 소결 공정에서 4개의 공정 변수가 동시에 변화할 때 유전율을 예측하기 위해 288개 데이터셋 중 258개의 학습데이터셋(training dataset)을 여러 기계학습법에 학습시킨 후 30개 평가데이터셋(test dataset)으로 예측 정확도를 평가한 결과, Ensemble Decision Tree (EDT) 알고리즘이 가장 높은 정확도를 보였고, 이 EDT 알고리즘 기반으로 유전율을 예측하는 메타모형을 개발했다. 개발된 EDT 메타모형의 경우 $R^2 = 99.41$ 의 비교적 높은 정확도를 보였으며, Fig. 4에는 평가데이터셋을 이용하여 확인한 메타모형의 정확도를 평가한 결과로 실제 측정된 유전율과 메타모형을 통해 예측된 유전율이 비교적 잘 일치하고 있음을 보여준다. 이러한 메타모형을 활용할 경우 추가 실험 없이 임의의 소결 조건에서 소결된 ZnO 바리스터 물질의 유전율을 예측할 수 있다. 또한 이 메타모형을 수치적 최적화기법에 적용하여 다양한 입력변수에 대한 유전율을 예측하는 과정을 반복 실행하여 최대 혹은 최소 유전율을 가지는 공정조건도 찾을 수 있다.

최적설계 분야에서 많이 활용되는 최적화 알고리즘 중 비교적 신뢰도가 높은 Hybrid Metaheuristic Algorithm (HMA)[7] 기반의 최적화를 통해 최대 유전율을 가지는 ZnO 바리스타 시료를 소결하는 공정조건을 도출했다. HMA의 경우 계산시간이 오래 걸리는 단점이 있지만,

다양한 최적화 알고리즘 중 상대적으로 정확한 결과를 보여주기 때문에 비교적 공정변수와 목적함수의 데이터 수가 적은 본 연구에 활용하였다. HMA를 통해 최대 유전율을 가지는 소결 조건을 도출한 결과, 소결 온도 = 1182.75°C , 소결 시간 = 506.2 min , 승온속도 = 1.0°C/min , 냉각속도 = 5.5°C/min 조건일 때 바리스터 소결체가 최대 유전율을 가질 것으로 예측되었다. 이는 기존의 288개 실험데이터셋 중 최대 유전율을 보인 소결 온도 = 1200.25°C , 소결 시간 = 125 min , 승온속도 = 1.0°C/min , 냉각속도 = 1.0°C/min 조건에 비해 소결 시간이 더 길고, 냉각속도가 매우 빠른 조건이었다(Table 3). 메타모델 기반 최적화 알고리즘이 제시한 공정 조건으로 실험을 진행하여 소결체의 유전율을 측정된 결과 1 kHz 주파수에서 721 얻어 기존 실험 결과로부터 얻은 최대값(683) 대비 5.56% 높은 값을 얻을 수 있었다. 이러한 DOE를 통해 생성된 실험데이터 및 기계학습으로 개발된 메타모델 기반의 최적화의 경우 소결로 내부의 실제 온도 정보만을 얻을 수 있다면 스케일업된 타 소결 장비에도 적용이 가능하다. 예를 들면 유한요소해석(FEM) 법을 통해 스케일업된 다른 소결 장비 내에서 소결 공정 조건에 따른 온도를 예측한다면 이 온도와 소결 시간, 승온속도, 냉각속도의 다른 공정변수를 입력하면 동일한 조성의 소결체가 보일 것으로 예상되는 유전율을 예측할 수 있다.

본 연구에서는 목적함수를 1 kHz 조건에서의 유전율로 한정하여 메타모형을 만들었지만 최종 개발해야 하는 제품의 요구조건에 따라 공정변수와 목적함수가 추가된 시스템의 경우에도 메타모델 개발 및 수치 기반의 최적화가 가능하다. 수치기반 최적화는 공정변수(설계변수)와 목적함수를 수치적으로 정의할 수 있는 모든 분야에 적용 가능하다. 따라서 ZnO 바리스터 소재 외 타 소재 및 공정 개발 분야에서도 이러한 인공지능 기반 메타모형을 활용한 최적화를 적용한다면 최적 공정조건 발굴, 공정 에너지 절감, 제품 성능 향상에 많은 도움이 될 것으로 예상된다.

5. 결 론

ZnO 바리스터의 경우 화학조성 및 미세구조에 의해 소자의 성능이 결정되며 제조 공정 중 미세구조 형성에

Table 3
Max. permittivity data and their sintering conditions comparison between experiment and optimization with EDT

	Sintering temperature [$^{\circ}\text{C}$]	Sintering time [min]	Heating rate [$^{\circ}\text{C/min}$]	Cooling rate [$^{\circ}\text{C/min}$]	Permittivity @ 1kHz
Experiment	1200.25	125	1.0	1.0	683
Optimization	1182.75	506.2	1.0	5.5	721

가장 많은 영향을 주는 공정은 소결 공정이다. 이 소결 공정에서 가장 중요한 변수는 소결 온도, 소결 시간, 승온속도, 냉각속도를 들 수 있고 이 변수들과 소결체의 전기적 물성과의 상관관계를 기계학습 기반 알고리즘에 학습하였다. OLHD 알고리즘 기반으로 통해 4개의 공정 변수 변화에 대한 72개 데이터셋 수집 계획을 수립했고, 열전대를 이용해 소결로 내 온도를 측정된 결과 소결로 내 4개 다른 위치에 따른 셋팅 온도와 실측온도와의 차이를 파악한 다음 실험을 실시하여 총 288개 데이터셋을 수집했다. 이 데이터셋을 Ensemble Decision Tree (EDT) 기반 기계학습 알고리즘에 학습시킨 후 4개의 공정변수를 입력하면 유전을 예상 값을 출력해주는 메타모델을 개발했다. 이 메타모델을 HMA 최적화 알고리즘에 적용하여 반복 계산을 통해 최대 유전율을 가질 수 있는 공정조건을 도출할 수 있었다. 이 공정조건에서 소결 실험을 진행 후 소결체의 유전율을 확인한 결과, 기존 실험에서 얻은 최대 유전을 보다 5.56% 높은 유전율을 얻을 수 있는 최적 공정조건을 도출할 수 있었다. 이처럼 실험계획법 기반으로 실험된 실험데이터를 인공지능 혹은 기계학습 기반의 알고리즘에 학습시킨 후 메타모델을 개발하고 이 메타모델을 통해 최적화를 수행한다면 반복 실험없이 적은 비용으로도 최적공정조건 도출이 가능하며 변수와 목적함수의 개수가 많은 세라믹공정에 적용한다면 공정비용 절감에 크게 기여할 수 있을 것으로 판단된다.

감사의글

본 연구는 한국세라믹기술원 정책연구사업(KPP-20007-2)의 연구비 지원으로 수행되었습니다.

References

- [1] T.K. Gupta, "Application of zinc oxide varistors", J. Am. Ceram. Soc. 73 (1990) 1817.
- [2] D.R. Clarke, "Varistor ceramics", J. Am. Ceram. Soc. 82 (1999) 485.
- [3] L.M. Levinson and H.R. Philipp, "Zinc oxide varistor - a review", Am. Ceram. Soc. Bull. 65 (1986) 639.
- [4] A. Badev, S. Marinel, R. Heuguet, E. Savary and D. Agrawel, "Sintering behavior and non-linear properties of ZnO varistors processed in microwave electric and magnetic fields at 2.45 GHz", Acta Mater. 61 (2013) 7849.
- [5] E. Olsson, G. Dunlop and R. Österlund, "Development of functional microstructure during sintering of ZnO varistor material", J. Am. Ceram. Soc. 76 (1993) 65.
- [6] G.-B. Park, M. Jeong and D.H. Choi, "A guideline for parameter setting of an evolutionary algorithm using optimal Latin hypercube design and statistical analysis", Int. J. Precis. Eng. Man. 16 (2015) 2167.
- [7] D. Che, Q. Liu, K. Rasheed and X. Tao, "Decision tree and ensemble learning algorithms with their applications in bioinformatics", Software Tools and Algorithms for Biological Systems. Advances in Experimental Medicine and Biology, 191, Springer, New York (2011).
- [8] M.W. Garder and S.R. Dorling, "Artificial neural networks - a review of applications in the atmospheric sciences", Atmos. Environ. 32 (1998) 2627.
- [9] PIAAnO (Process Integration, Automation and Optimization) User's Manual, Version 2020, PIDOTECH Inc., 2020.