creative commons

COMMONS DEED

저작자표시-비영리-변경금지 2.0 대한민국

이용자는 아래의 조건을 따르는 경우에 한하여 자유롭게

- 이 저작물을 복제, 배포, 전송, 전시, 공연 및 방송할 수 있습니다.

다음과 같은 조건을 따라야 합니다:

저작자표시. 귀하는 원저작자를 표시하여야 합니다.

비영리. 귀하는 이 저작물을 영리 목적으로 이용할 수 없습니다.

변경금지. 귀하는 이 저작물을 개작, 변형 또는 가공할 수 없습니다.

- 귀하는, 이 저작물의 재이용이나 배포의 경우, 이 저작물에 적용된 이용허락조건을 명확하게 나타내어야 합니다.
- 저작권자로부터 별도의 허가를 받으면 이러한 조건들은 적용되지 않습니다.

저작권법에 따른 이용자의 권리는 위의 내용에 의하여 영향을 받지 않습니다.

이것은 이용허락규약(Legal Code)을 이해하기 쉽게 요약한 것입니다.

Disclaimer

dCollection

공학석사학위논문

레이저 유도 플라즈마 분광법과 다변량 분석을 이용한 겹친 지문 분리 알고리즘 연구

A study on separation of overlapping fingerprints using laser-induced breakdown spectroscopy combined with multivariate analysis

2018년 2월

서울대학교 대학원

기계항공공학부

양 준 호

레이저 유도 플라즈마 분광법과 다변량 분석을 이용한 겹친 지문 분리 알고리즘 연구

A study on separation of overlapping fingerprints using laser-induced breakdown spectroscopy combined with multivariate analysis

지도교수 여 재 익

이 논문을 공학석사 학위논문으로 제출함

2017년 12월

서울대학교 대학원

기계항공공학부

양 준 호

양준호의 공학석사 학위논문을 인준함

2017 년 12 월

위 원 장 _____ 윤 영 빈 _____

부위원장 _____ 여 재 익 _____

위 원 _____ 도 형 록 _____

초 록

본 논문에서는 레이저 유도 플라즈마 분광(laser-induced plasma spectroscopy, LIPS) 신호를 이용하여 겹친 지문의 분리를 실행하였다. 출처가 다른 유류 지문의 경우, 특정한 화학적 성분(K, Mg, Ca, O, Na)의 차이가 존재하는 것을 확인하였고 이를 기반으로 다변량 분석법을 활용하여 유류 지문의 종류별로 지문을 분별하는 것이 가능하였다. 최종적으로는 레이저 스캐닝 기법을 활용하여 2차원 화학적 분포도 형태로 겹친 유류 지문을 시각적으로 분리할 수 있었다. 두 개 혹은 세 개 혹은 그 이상의 겹친 유류 지문을 안정적으로 분리할 수 있음을 확인하였다. 추가적으로 출처가 같은 지문상태에서도 지문이 찍히는 시간차이를 기반으로 지방산과 아미노산의 수분이 사라지면 경화 현상이 일어나게 되고 이는 펩티드 결합과 같은 결합의 생성을 불러일으키게 된다. 결과적으로 CN, CC band의 LIBS, Raman 신호 세기가 변동이 생기는 것을 확인하였다. 이를 기반으로 마찬가지고 다변량 분석법을 사용하여 LIBS 스펙트라를 구분하고 2차원 화학적 분포도 형태로 겹친지문을 각각 복원하는 것이 가능하였다.

주요어 : 레이저 유도 플라즈마 분광법 (LIBS), 유류 지문, 겹친 지문, 다변량 분석법, 라만 분광법

학번 : 2016-20744

목 차

초 록 ····· i
목 차 ····· ii
표 목차 ····· iv
그림 목차 ····· iv

제 1 장 서 론 1

제 2 장 출처가 다른 겹친 유류 지문 분리 알고리즘 3
2.1 실험 방법 ····· 3
2.2 실험 결과 및 분석 ····· 5
2.2.1. LIBS, Raman 레이저 스펙트럼 결과 ····· 5
2.2.2. 출처가 다른 유류 지문의 다변량 분석법 결과 ····· 8
2.2.3. 출처가 다른 겹친 지문 분리 알고리즘 ····· 13

제 3 장 출처가 같은 유류 지문 분리 알고리즘 15
3.1 실험 방법 ····· 15
3.2 실험 결과 및 분석 ····· 19
3.2.1. LIBS, Raman 레이저 스펙트럼 분석 ····· 19
3.2.2. CN, CC band 분석 및 다변량 분석법 결과 ····· 25
3.2.3. 출처가 같은 겹친 지문 분리 알고리즘 ····· 32
제 4 장 결론 34

참고문헌 ····· 35
Abstract ····· 38

그림 목차

그림 2.1 유류 지문을 분석하기 위한 LIBS 실험 도식 ····· 4
그림 2.2 유류 지문을 분석하기 위한 실제 LIBS 실험 setup ····· 4
그림 2.3 유류 지문을 분석하기 위한 Raman 실험 도식 ····· 6
그림 2.4 네 가지 유류 지문의 LIBS 스펙트럼 ····· 8
그림 2.5 유류 지문의 LIBS 스펙트라 ····· 9
그림 2.6 알루미늄 판위에서의 잉크 레이저 스펙트라 (a) 알루미늄 판위에서의 유류 지문 레이저 스펙트라 (b) 플라스틱 판위에서의 유류 지문 레이저 스펙트라 (c) 토양 샘플위에서의 유류 지문 레이저 스펙트라 (d) ····· 10
그림 2.7 알루미늄 판위에서 실제 잉크 지문 모습 (a) 766.587 nm 신호를 사용한 유류 지문 (b) 770.047 nm 신호를 사용한 유류 지문 (c) ····· 11
그림 2.8 알루미늄 판위에서 실제 유류 지문 모습 (a) 766.587 nm 신호를 사용한 유류 지문 (b) 770.047 nm 신호를 사용한 유류 지문 (c) ····· 11
그림 2.9 플라스틱 판위에서 실제 유류 지문 모습 (a) 766.587 nm 신호를 사용한 유류 지문 (b) 770.047 nm 신호를 사용한 유류 지문 (c) ····· 12
그림 2.10 토양 샘플 판위에서 실제 유류 지문 모습 (a) 766.587 nm 신호를 사용한 유류 지문 (b) 770.047 nm 신호를 사용한 유류 지문 (c) ····· 12
그림 2.11 알루미늄 샘플 판위에서 Raman 분광 결과 (a) 1531(1/cm) 신호 세기를 사용한 유류 지문 (b) ····· 13
그림 2.12 4가지 유류 지문의 PCA 분석 결과 ····· 14

그림 2.13 PCA 분석 시에 사용된 PCs ····· 14
그림 2.14 SIMCA의 분류 결과 그래프 ····· 16
그림 2.15 겹친 지문 분리 알고리즘 도식도 ····· 17
그림 2.16 겹친 지문 분리 결과 ····· 18
그림 3.1 시간차이를 두고 겹친 지문을 찍는 방식 ····· 19
그림 3.2 유류 지문을 분석하기 위한 실제 LIBS 실험 도식 ····· 19
그림 3.3 네 가지 유류 지문의 LIBS 스펙트럼 ····· 21
그림 3.4 네 가지 유류 지문의 시간 변화에 따른 CN band LIBS 스펙트럼 변화 ····· 22
그림 3.5 알루미늄 판위에서의 유류 지문의 CN band 신호세기 상대적 변화 과정 (a), 알루미늄 판위에서의 유류 지문의 CN band 신호세기 절대적 변화 과정 (b) ····· 23
그림 3.6 시간이 지남에 따른 Raman 분광법 레이저 스펙트럼 24
그림 3.7 시간이 지남에 따른 fatty acid의 Raman 분광법 레이저 스펙트럼 ····· 24
그림 3.8 시간이 지남에 따른 fatty acid의 Raman 분광법 레이저 스펙트럼 ····· 25
그림 3.9 공기에 노출된 지 1시간이 지난 후, 시간이 지남에 따른 Raman 분광법 레이저 스펙트럼 ····· 26
그림 3.10 공기에 노출된 지 1시간이 지난 후, 시간이 지남에 따른 fatty acid의 Raman 분광법 레이저 스펙트럼 ····· 26
그림 3.11 공기에 노출된 지 1시간이 지난 후, 시간이 지남에 따른 fatty acid의 Raman 분광법 레이저 스펙트럼 ····· 27
그림 3.12 4가지 유류 지문의 시간이 변함에 따른 PCA 분석 ·· 28
그림 3.13 시간에 따른 겹친 지문 분리 알고리즘 도식도 ····· 30
그림 3.14 출처가 같은 겹친 지문의 분리 결과 ····· 31

제 1 장 서론

레이저 유도 파괴 분광법 혹은 레이저 유도 플라즈마 분광법 (Laser-Induced Breakdown Spectroscopy or Laser-Induced Plasma Spectroscopy)은 상대적으로 높은 에너지의 레이저로 인하여 물질의 상태에 따라 고체, 액체, 혹은 기체 상태에서 플라즈마를 만들게 되고 이때 방출하는 원자 신호를 해석함으로써, 레이저가 조사된 영역의 화학적 조성비를 추정하는 분광법 방식이다.[1, 2] 상대적으로 높은 에너지의 레이저가 targed sample에 조사가 되면 물체를 레이저 에너지를 흡수하면서 액화, 기화와 같은 물리적 현상을 거치게 되며 이때 반복적인 물리적 현상이 쌓이면서 결과적으로 플라즈마를 만들게 되는 것이다. 이때 조사된 영역의 원자들은 들뜬 상태를 일정 시간 200~300 ns 정도 유지하다가 다시 바닥 상태로 떨어지면서 빛을 방출하게 된다. 이때 원자 혹은 분자의 오비탈 구조의 차이로 바닥상태로 떨어지는 빛의 파장과 신호세기의 차이가 존재하게 된다. 이 파장과 신호세기는 원자와 분자의 종류에 따라 다르기 때문에 LIBS는 최종적으로 원자 성분의 정량 및 정성분석이 가능한 분광법이다. LIBS는 실시간으로 레이저 스펙트럼을 도출할 수 있으며, 소량의 시료 역시도 안정적으로 오염가능성 없이 분석할 수 있다. 또한 광학장비가 간단하고 원거리 검출이 가능하다라는 장점이 존재한다. 이러한 장점을 기반으로 LIBS는 우주 탐사, 연소계측, 우주 탐사와 같은 영역에 지속적으로 활용되고 있다.[3-5]

라만 분광법이란 분자의 진동 및 회전 운동을 분자 간 혹은 분자 내 상태에 대해 확인하는 분광 분석법으로써, 레이저 빛이 샘플에 조사되면 빛의 일부가 진행방향에서 이탈하여 산란 현상이 일어나게 되고 이때 빛 에너지를 흡수하거나 방출하여 빛의 파장이 변화하게 된다. 이를 라만 산란이라고 말하며, 분자 간의 배열이나 분자

성분에 따라 산란 정도를 측정할 수 있어 라만 분광법을 통하여 레이저가 조사된 샘플의 분자 성분을 파악할 수 있다. 라만 분광법은 LIBS와 비교하여 대부분의 광학 장치를 공유하기 때문에 LIBS와 상호 보완적인 실험 결과를 얻을 수 있다.[6, 7]

실제로 LIBS는 범죄 분석학 영역에서도 활용이 되고 있다. 또한 지문의 검출과 지문을 분석하는 용도로도 사용되고 있다. 기존의 연구들은 지문의 선을 완벽하게 도출하는 것이 최종적인 목표가 아닌 화학적인 성분표를 도출하는 것을 목표로 하고 있다. Abdelhamid et al [8] 에서 확인할 수 있듯이 지문에 폭발물 잔해를 찾아 레이저 스펙트럼으로 도출한 결과가 존재한다. 또 다른 논문에서는 펨토초 레이저를 사용하여 레이저 crator를 줄이고, 지문의 일부분을 검출하고 복원한 논문이 존재한다. [9] 그러나 이러한 논문들은 단순한 하나의 지문을 분리하는 것에 그치고 있다. 실제 범죄 현장에서는 온전한 지문을 찾는 것은 어려운 일이며 또한 하나의 지문만을 분석하는 상황은 실제로는 잘 일어나지 않는다.

실제 범죄 현장에서 자주 발생되는 난제는 겹친 지문이다. 겹친 유류 지문은 각자의 지문 유선을 파악하는 것과 기본적으로 추출하는 과정부터 심혈을 기울여야 한다. 기존의 연구들을 살펴보면, Feng et al [10]에서는 특정 지점에서 지문의 점을 시작점으로 설정해주면 백터 방향을 기반으로 지문의 융선을 분리하고 백터의 연속성을 기반으로 두 지문이 겹친 지문인지 하나의 지문인지를 판단할 수 있다. Stojanovic et al [11]의 연구에서는 neural 네트워크 방식을 채택하여 지문을 분리한다. Bradshaw et al [12]의 연구에서는 유일하게 화학적 방식인 mass spectrometry를 이용하여 겹친 지문을 분리한다. 그러나 이미지 처리 방식의 한계는 명확하다. 기본적으로 사람의 가정이 들어가야 하며, 지문의 선명도를 높이기 위하여 지문에 화학적 전처리과정을 거쳐야한다.

본 연구의 목적은 기존에는 사용되지 않았던 LIBS 방식을 사용하여 겹친 지문의 레이저 스펙트럼을 비교하고 다변량 분석법을 이용하여 분류하는 것이다. 그리고 언급한 분류 방식을 레이저 스캐닝한 데이터에 대입하여 겹친 지문을 최종적으로 분류 및 각각 복원하는 것에 목표가 있다. 이때 본 연구는 두 가지 상황을 가정하였는데, 하나는 지문의 출처가 다른 상황과 지문의 출처가 같은 상황이다. 지문은 사람의 행동, 식습관, 거주 지역등의 특징에 따라 유류의 화학적 성분의 차이를 보일 수 있다. [13-15] 이를 기반으로 LIBS 스펙트라의 결과를 분석하고 분류할 수 있게되는 것이다. 다른 하나의 가정인 출처가 다른 상황에서의 지문의 분류의 경우, 지문이 찍히는 짧은 시간의 차이가 존재하는 상황에서 유류 성분의 condensation 현상 때문에 아미노산 및 지방산의 함량 변화가 일어난다.[16-17] 이를 기반으로 시간 차이가 존재하는 유류 지문들을 위와 동일한 다변량 분석법 방식을 사용하여 분류할 수 있게 되는 것이다.

제 2 장 출처가 다른 겹친 유류 지문 분리 알고리즘

2.1 실험 방법

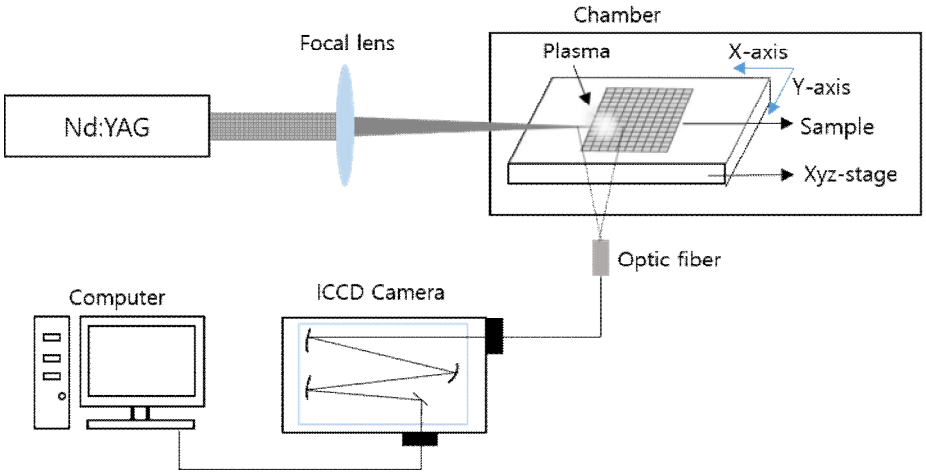


그림 2.1 유류 지문을 분석하기 위한 LIBS 실험 도식

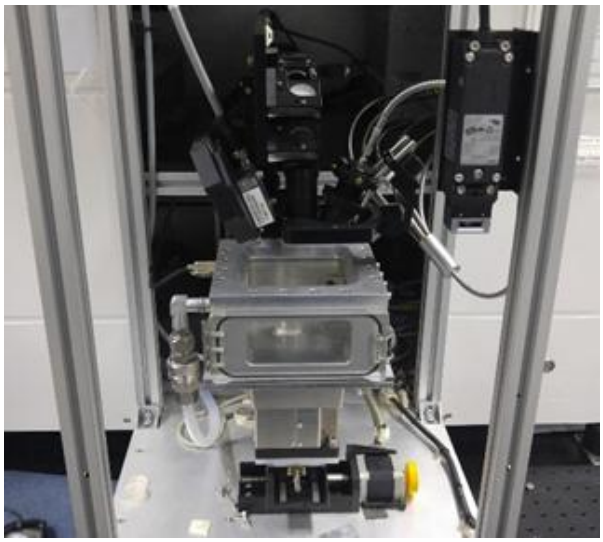


그림 2.2 유류 지문을 분석하기 위한 실제 LIBS 실험 setup

그림 2.1 은 상대적으로 높은 에너지의 레이저를 이용하여 알루미늄 판위에 놓여진 유류 지문에 플라즈마를 발생시키고, 레이저 유도 플라즈마로부터 발생하는 분광 신호를 측정하기 위한 실험 장치를 나타낸다. 레이저에서 발진되는 레이저의 주요 파장대는 Nd:YAG레이저이기 때문에 1064 nm의 파장을 가지며, 대략적인 레이저 에너지의 경우 레이저 스캐닝을 통해 화학적 분포도를 도출하는 상황에서는 레이저 에너지를 상대적으로 줄이고, 화학적 분포도의 해상도를 높이기 위하여 대략 10 mJ정도의 레이저 에너지를 사용하였다. 그러나 유류 지문을 다변량 분석법을 활용하여 분리하고 분류하는 상황에서는 상대적으로 신호세기 변화를 잘 보기 위하여 20 mJ정도의 에너지를 사용하였다. Q-switched 레이저(RT-250Ec, Applied Spectra Inc)를 사용하였으며, 5~6 ns의 pulse duration을 사용하였다. Gate delay는 1.05 ms으로 설정하였으며, 화학적 분포도를 얻는 상황에서는 레이저가 조사되는 거리를 125 um로 고정하였다. 레이저의 repetition rate의 경우 1Hz로 설정하였다. 6채널 ICCD 분광기의 경우, 198 nm부터 1050 nm의 영역의 파장을 검출할 수 있게금 설정하였다. 분광계의 해상도는 자외선에서 가시광선까지 0.1 nm, 가시광선에서 근적외선까지는 0.12 nm의 해상도를 가진다. 지문의 화학적 분포도를 검출하기 위해서는 레이저 스캐닝이 필요하므로 xyz-stage를 사용하여 일정 구간 이동하며 레이저 스케닝을 사용하였다. z축 이동으로 레이저와 시료간의 간격 역시 조정하였다. 플라즈마의 고온 고압에 의한 신호세기 변화를 최대한 감소시키기 위하여 본 연구에서는 대기압과 온도 조절이 가능한 챔버를 사용하였다.

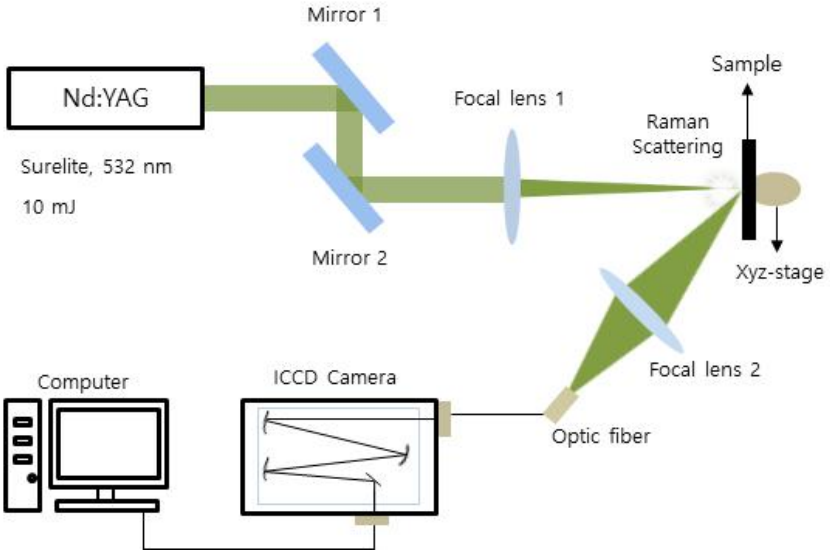


그림 2.3 유류 지문을 분석하기 위한 Raman 실험 도식

라만 산란을 발생시키기 위하여 사용한 레이저 장비는 Q-switch Nd:YAG 레이저(Surelite 1, Continum Inc.)를 사용하였다. 레이저는 5-7 ns의 pulse duration을 가지며, 레이저 주 파장의 경우 532 nm 파장을 사용하였다. 레이저 에너지의 경우, 레이저 삭마 현상을 피하면서 산란 현상을 일으키기 위하여 LIBS실험과 비교하여 레이저가 조사되는 영역을 확대하고(200 μm) 레이저 에너지는 9 mJ 이하의 펄스 에너지를 사용하였다. 레이저가 조사될 때 gate delay는 0 μs이다. repetition rate의 경우 10Hz로 설정하였다. 분광기의 경우, LIBS의 신호와 라만 산란 신호를 동시에 계측 가능한 CCD분광기(MonoRA320i Andor, iStar Andor)를 사용하였다. 라만 산란현상 시에 발생하는 Rayleigh 산란 빛을 제거 해주기 위하여 long pass filter(LP03-532RU-25, Thorlab)를 사용하였다.

지문을 알루미늄 판에 새기는 과정은 다음과 같다. 환경의 영향을 줄이기 위하여 알코올솜으로 사람의 검지를 일정시간 세척한다. 이

후 이마의 유류를 10초정도의 시간을 가지고 검지에 묻힌다. 이마의 유류가 묻은 검지를 알루미늄 판위에 약간의 힘을 사용하여 5초 정도 누른다. 본과정을 겹친지문을 생성하는 경우에는 5~10초 가량의 차이를 두고 지문을 새겼다. 이후에는 시간의 영향을 최소화하기 위하여 바로 챔버에 투입하여 LIBS 및 Raman 분석을 시행하였다. 지문은 20~30대 아시아 남성의 지문을 4개 추출하여 실험이 진행되었다.

2.2 실험 결과 및 분석

2.2.1 LIBS, Raman 레이저 스펙트럼 결과

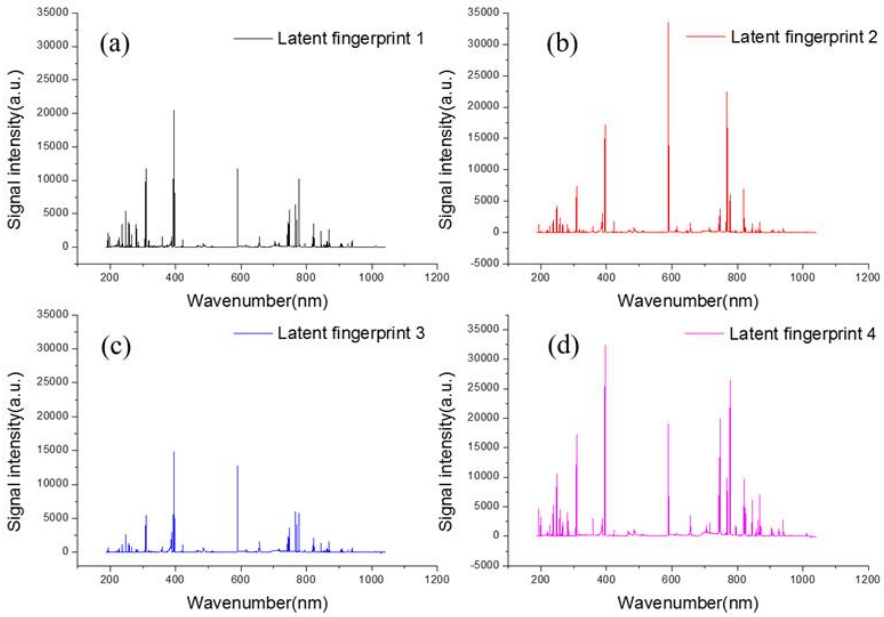


그림 2.4 네 가지 유류 지문의 LIBS 스펙트럼

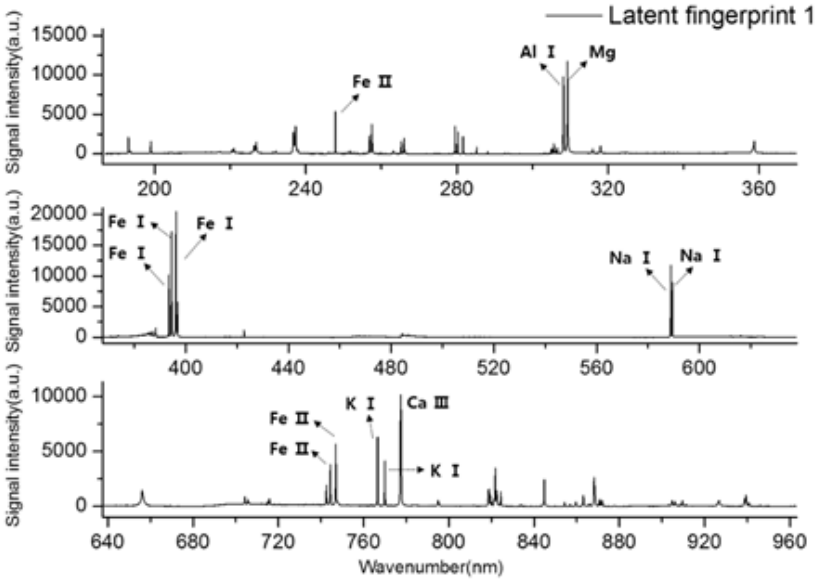


그림 2.5 유류 지문의 LIBS 스펙트라

알루미늄 판위에 유류 지문을 묻히고, LIBS 실험을 진행한 결과는 위의 그림과 같다. 위의 그림에서 확인할 수 있듯이 유류 지문은 특정한 파장대에서 높은 신호대 잡음비를 가지는 신호세기를 볼 때 기본적으로 비슷한 성분으로 이루어져 있는 것을 확인할 수 있다. 주요 성분으로는 칼륨(766.587, 770.047 nm), 나트륨(521.009 nm), 칼슘(616.129 nm), 철분(526.998 nm) 등이 검출이 된다. 위와 같은 레이저 스펙트럼을 도출하기 위해서는 각 지문별로 10개의 레이저 스펙트럼을 평균 내어 결과를 만들었다.

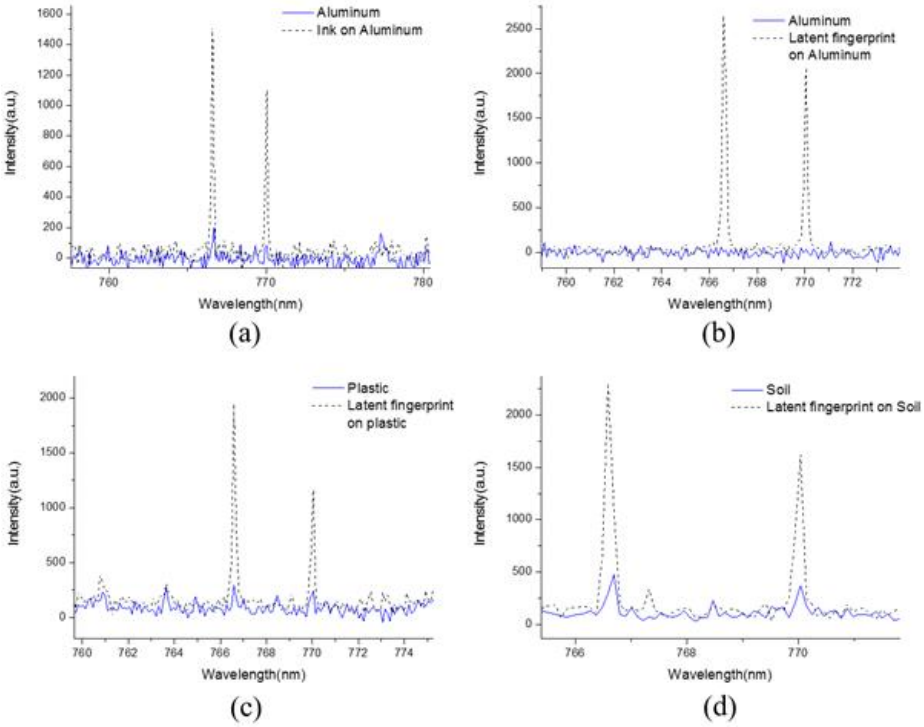


그림 2.6 알루미늄 판위에서의 잉크 레이저 스펙트라(a), 알루미늄 판위에서의 유류 지문 레이저 스펙트라(b), 플라스틱 판 위에서의 유류 지문 레이저 스펙트라(c), 임의로 제작된 토양 샘플위에서의 유류 지문 레이저 스펙트라(d)

본 연구에서는 실제 범죄 현장에서 존재하는 상황에서 유류 지문의 위치를 추출하는 법, 그리고 유류 지문을 판별하는 법에 대해서도 서술하고 있다. 위의 그림 2.6의 결과에서 확인할 수 있듯이 유류 지문이 존재하는 경우 그렇지 않은 경우와 비교하여 칼륨(766.587, 770.047 nm)의 신호세기가 뚜렷하게 차이가 존재하는 것을 확인할 수 있다. 위의 결과를 기반으로 하나의 지문을 다양한 판위에서 이미지를 도출하고자하는 연구를 진행하였다. 아래 그림 2.7부터 2.10에서 확인할 수 있듯이 칼륨의 신호세기를 기반으로 다양한 판의 화학적 분포도와 유류 지문의 화학적 분포도를 분리할 수 있

는 것을 확인할 수 있다. 모든 2차원 화학적 분포도를 도출하는 실험에서는 레이저를 125 um의 간격을 가지고 조사하였으며, 대략적으로 running time은 각 지문별로 3~4 시간 가량이 소모되었다.

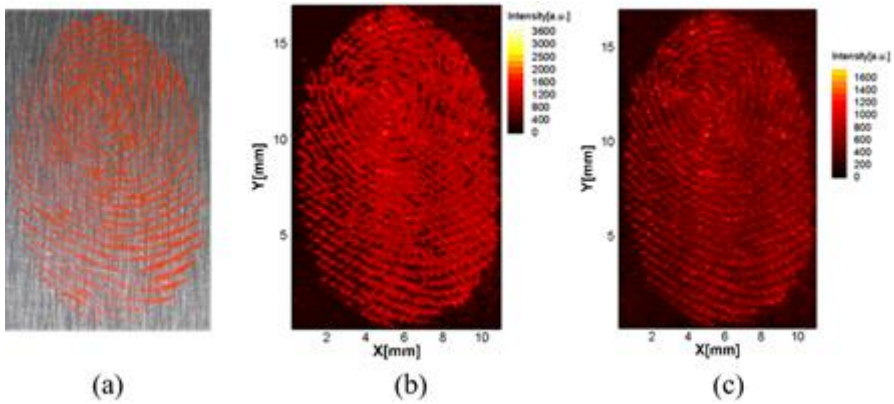


그림 2.7 알루미늄 판위에서 실제 잉크 지문 모습(a), 766.587 nm 신호를 사용한 유류 지문(b), 770.047 nm 신호를 사용한 유류 지문(c)

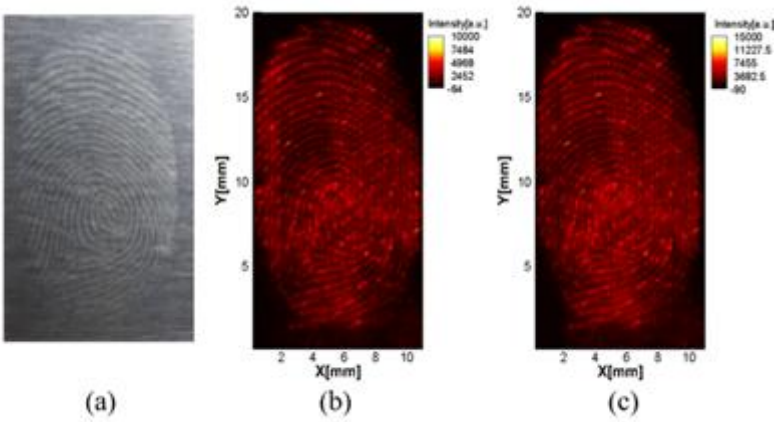
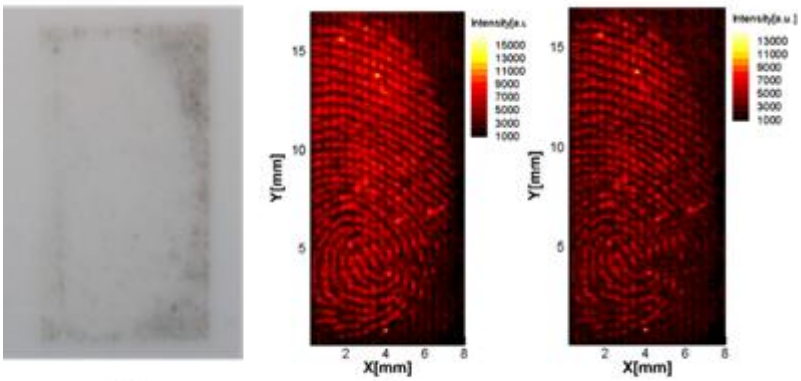
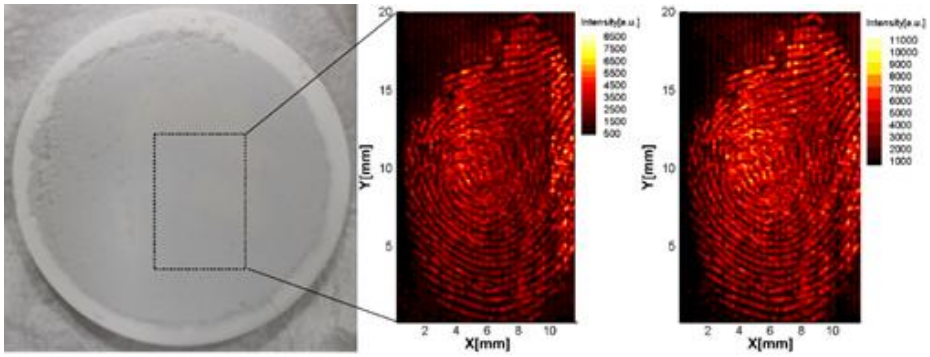


그림 2.8 알루미늄 판위에서 실제 유류 지문 모습(a), 766.587 nm 신호를 사용한 유류 지문(b), 770.047 nm 신호를 사용한 유류 지문(c)



(a) (b) (c)

그림 2.9 플라스틱 판위에서 실제 유류 지문 모습(a), 766.587 nm 신호를 사용한 유류 지문(b), 770.047 nm 신호를 사용한 유류 지문(c)



(a) (b) (c)

그림 2.10 토양 샘플 판위에서 실제 유류 지문 모습(a), 766.587 nm 신호를 사용한 유류 지문(b), 770.047 nm 신호를 사용한 유류 지문(c)

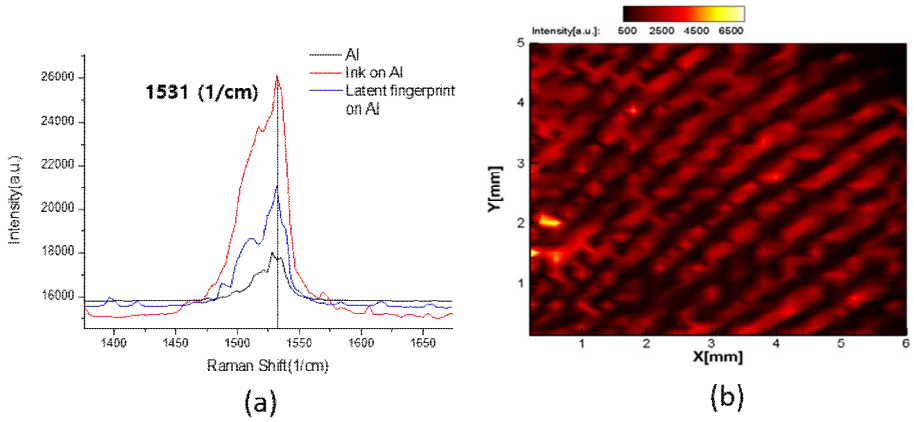


그림 2.11 알루미늄 샘플 판위에서 Raman 분광 결과(a), 1531 (1/cm) 신호 세기를 사용한 유류 지문(b)

라만 분광법을 사용하여 알루미늄 판위에서 잉크 지문과 유류 지문의 레이저 스펙트럼을 비교하면 위의 그림 2.11과 같은 결과를 도출할 수 있다. 위의 그림에서 확인할 수 있듯이, CC band를 의미하는 1531 raman shift에서 가장 큰 신호 세기 차이를 가지는 것을 확인할 수 있으며 위의 레이저 스펙트럼을 기반으로 xyz-stage를 200 um씩 이동하여 지문을 도출하면 위의 결과와 마찬가지로 선명한 지문의 형체를 도출할 수 있다.

2.2.2 출처가 다른 유류 지문의 다변량 분석법 결과

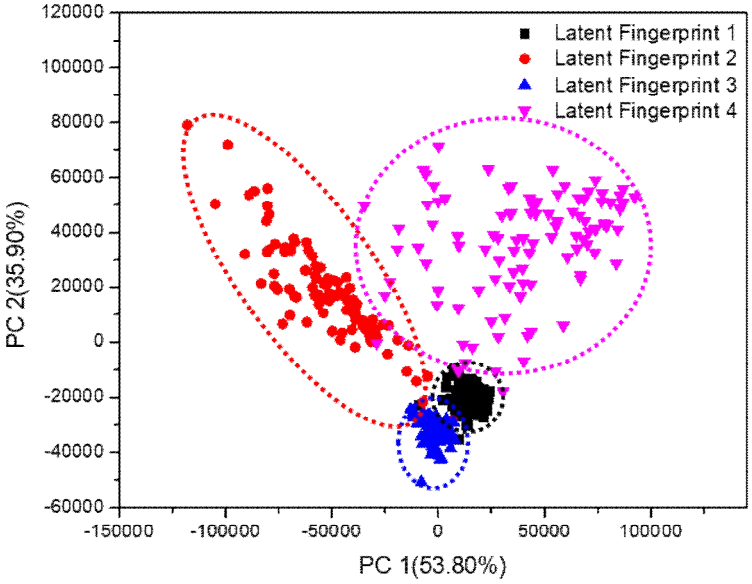


그림 2.12 4가지 유류 지문의 PCA 분석 결과

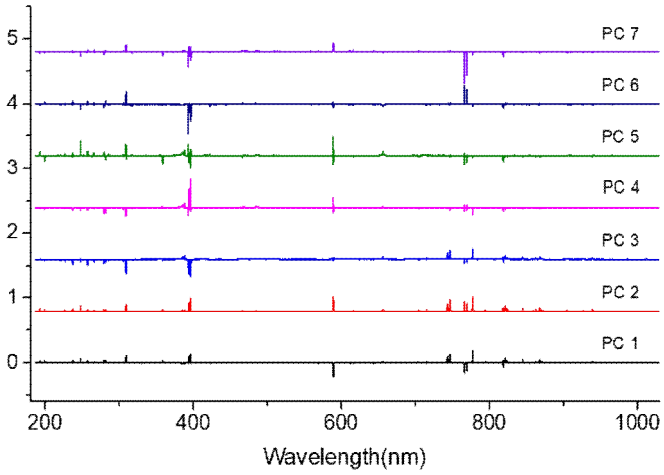


그림 2.13 PCA 분석시에 사용된 PCs

본 연구에서는 주성분 분석인 PCA를 기반으로 사용할 수 있는 SIMCA와 PLS-DA 분류 방식을 사용하였다. 먼저 PCA는 상대적으로 높은 차원의 데이터를 일정한 기준으로 다시 병렬하는 방식이다. 이후 가장 백터를 표현하기 쉬운 2~3 개의 백터만을 추출하고 추출된 백터만을 이용하여 2차원 혹은 3차원 공간의 한점으로 레이저 스펙트럼을 옮기게 된다. 결과적으로는 본 연구에서는 13000개 정도의 데이터를 가지는 레이저 스펙트럼이 단순히 x, y 포인트의 정보를 가지는 low data로 변화하게 되는 것이다. PCA는 이후 분류 방식의 기본이 되는 분류 방식이다. 위의 그림 2.12와 마찬가지로 4개의 유류 지문에 대하여 100개씩의 레이저 스펙트럼을 분석하였을 때 4가지의 유류 지문이 분류가 되는 것을 확인할 수 있다. PCA 결과로 볼 때 추후 SIMCA와 PLS-DA 방식을 사용하였을 때도 충분히 유류 지문의 출처를 추정하고 분류할 수 있음을 확인할 수 있다.

Soft-Independent Modeling of Class Analogy(SIMCA)는 PCA 결과를 기반으로 PCA로 나뉘어진 일정 영역에 따라 모델링 스스로 분류의 기준을 주고 이후 레이저 스펙트럼을 다시 PCA plot상에 점으로 환원시켰을 때 본 레이저 스펙트럼 데이터가 어떠한 유류 지문 부류에 속하는지 확인할 수 있다. 본 SIMCA 방식은 가장 오랫동안 쓰여온 분류 방식으로 PCA를 기반으로 진행이 되고, PCA 결과가 좋지 못할 시에 최종적인 결과도 좋지 않을 가능성이 높은 아주 기본적인 분류방식이다.

Partial least squares discriminant analysis(PLS-DA)는 PCA 결과를 기반으로 하지만 SIMCA 분류방식과는 다르게 기존의 PCA 결과와 더불어 계속해서 들어오는 결과에 대해서도 학습을 진행하여 최적의 분류를 할 수 있게끔하는 방식이다. SIMCA에 비해 유현한 방식이라 볼 수 있으며, 실제 SIMCA보다 향상된 분류 가능성을 가진다.

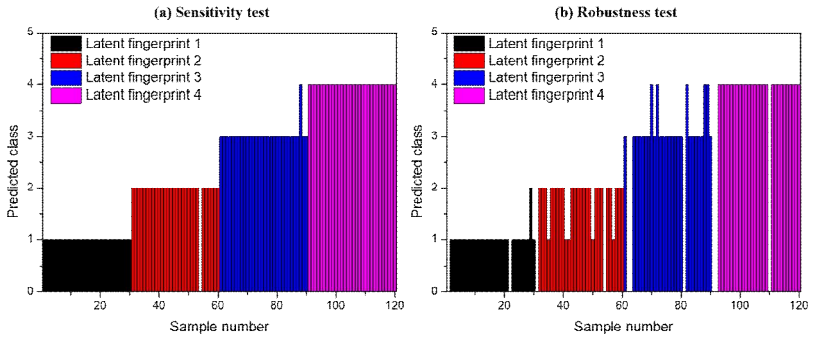


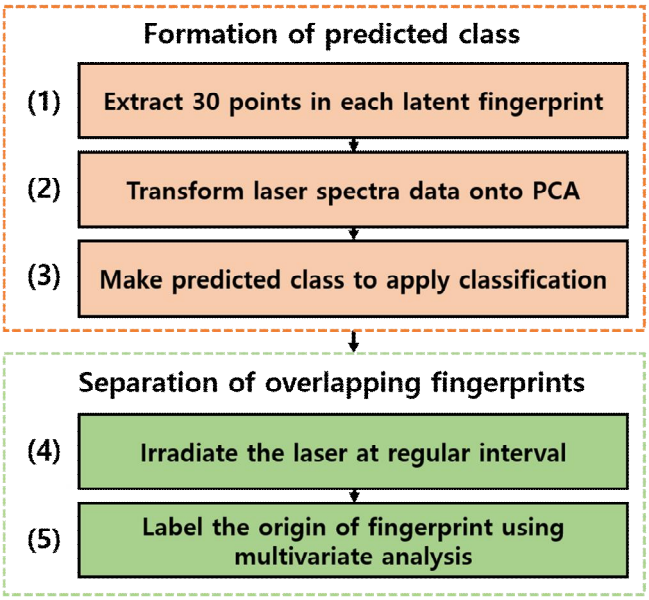
그림 2.14 SIMCA의 분류 결과 그래프

본 연구에서는 통계적인 신뢰도를 높이기 위하여 특정한 샘플로 PCA 영역을 만든 뒤에, 그 샘플들을 포함하여 분류를 실행하는 sensitivity 실험과 PCA 영역을 만들었던 샘플을 제외하고 분류를 실행하는 robustness 실험을 진행하였다. 결과적으로 SIMCA는 sensitivity 실험에서는 96% 확률의 정확도를 robustness 실험에서는 85% 의 정확도를 가지는 것을 확인하였다. PLS-DA의 분류 확률의 경우, 각각 90%, 82%의 확률을 가지는 것을 확인하였다.

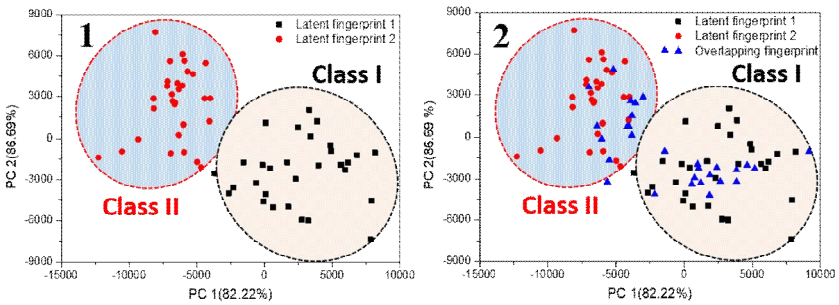
2.2.3 출처가 다른 겹친 지문 분리 알고리즘

본 연구에서는 우선적으로 겹쳐진 두 지문의 개별적인 30개의 레이저 스펙트럼을 이용하여 이후 SIMCA와 PLS-DA로써 분류 될 수 있는 기준을 만들었다. 30개의 선별된 레이저 스펙트럼들은 실제 분류가 사용되는 시점에서는 사용되지 않았다. 즉 labeling을 위해 사용된 레이저 스펙트럼들은 레이저 스캐닝을 통해서 도출된 데이터는 아니다. 최종적으로 레이저 스캐닝을 거치고 레이저 스캐닝의 모든 점을 PCA 데이터로 환원시킨다. 즉 SIMCA,

PLS-DA 방식을 사용하여 분류를 할 수 있게 되는 것이다. 그림 2.15 (b)는 알고리즘의 도식을 알기 쉽기 표현한 것으로 검정색과 빨강색의 점들은 labeling을 할 수 있는 class를 만드는 점들기고 이후에 등장하는 파란색 삼각형은 지정된 class에 배정되어 본 레이저 스펙트라가 어떠한 유류 지문의 레이저 스펙트라인지 판단하는 것이다.



(a)



(b)

그림 2.15 겹친 지문 분리 알고리즘 도식도

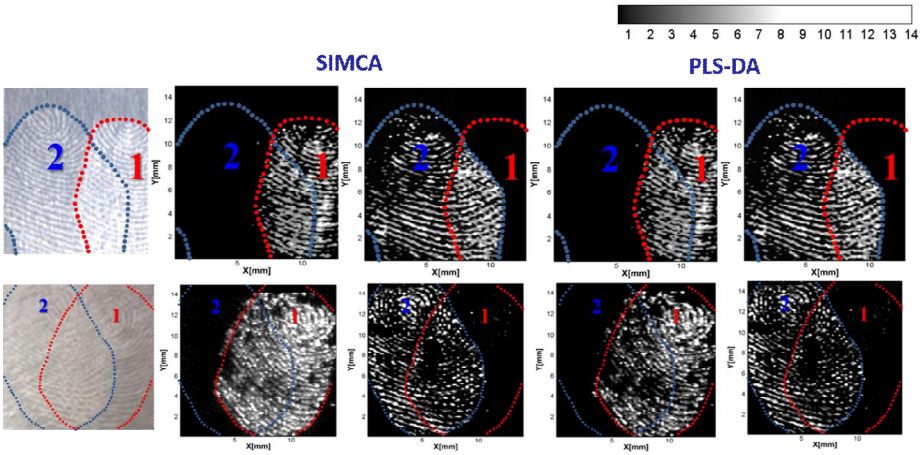


그림 2.16 겹친 지문 분리 결과

제 3 장 출처가 같은 겹친 유류 지문 분리 알고리즘

3.1 실험 방법

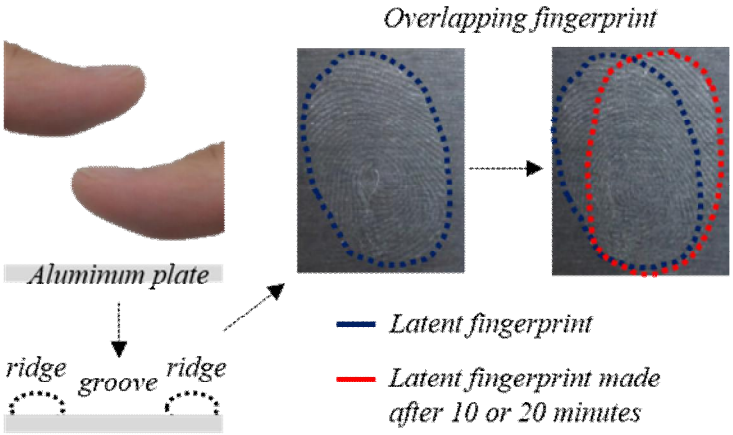


그림 3.1 시간차이를 두고 겹친 지문을 찍는 방식

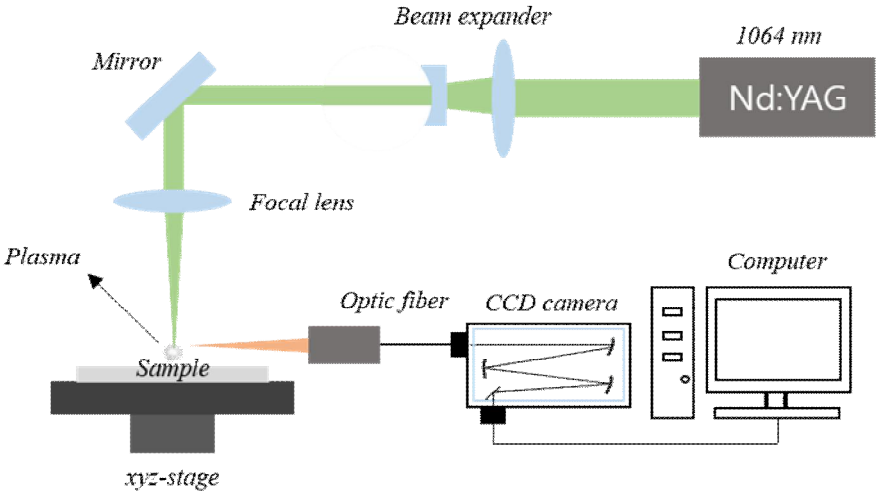


그림 3.2 유류 지문을 분석하기 위한 실제 LIBS 실험 도식

그림 3.1 은 출처가 같은 겹친 유류 지문을 제작하는 과정을 설명하고 있다. 출처가 같은 사람의 겹친 지문을 제작하기 위해서는 2장에서 지문을 제작한 방식과 동일하게 지문을 찍을 때마다 1차적인 알코올 세척과 이마에 유류를 묻혀 10초간 알루미늄 판위에 지문을 찍는 방식을 사용하였다. 두 번째 지문을 찍는 상황에서도 동일하게 알코올 세척과정과 이마에 유류를 묻히는 과정, 다시 알루미늄 판위에 찍는 과정을 거쳤다. 결과적으로 10분 혹은 20분전에 찍힌 유류 지문만이 외부 환경에 의해 영향을 받을 수 있게끔 환경을 조성하였다.

실험을 진행하였던 레이저 장비 설명은 다음과 같다. 레이저에서 발진되는 레이저의 주요 파장대는 Nd:YAG레이저이기 때문에 1064 nm의 파장을 가지며 대략적인 레이저 에너지의 경우 레이저 스캐닝을 통해 화학적 분포도를 도출하는 상황에서는 레이저 에너지를 상대적으로 줄이고, 화학적 분포도의 해상도를 높이기 위하여 대략 10 mJ정도의 레이저 에너지를 사용하였다. 그러나 유류 지문을 다변량 분석법을 활용하여 분리하고 분류하는 상황에서는 상대적으로 신호세기 변화를 잘 보기 위하여 20 mJ정도의 에너지를 사용하였다. Q-switched 레이저(RT-250Ec, Applied Spectra Inc)를 사용하였으며, 5~6 ns의 pulse duration을 사용하였다. Gate delay는 1.05 ms으로 설정하였으며, 화학적 분포도를 얻는 상황에서는 레이저가 조사되는 거리를 125 um로 고정하였다. 레이저의 repetition rate의 경우 1Hz로 설정하였다. 6채널 ICCD 분광기의 경우, 198 nm부터 1050 nm의 영역의 파장을 검출할 수 있게금 설정하였다. 분광계의 해상도는 자외선에서 가시광선까지 0.1 nm, 가시광선에서 근적외선까지는 0.12 nm의 해상도를 가진다. 지문의 화학적 분포도를 검출하기 위해서는 레이저 스캐닝이 필요하므로 xyz-stage를 사용하여 일정구간 이동하며 레이저 스케닝을 사용하였다. z축 이동으로 레이저와

시료간의 간격 역시 조정하였다. 플라즈마의 고온 고압에 의한 신호 세기 변화를 최대한 감소시키기 위하여 본 연구에서는 대기압과 온도 조절이 가능한 챔버를 사용하였다.

2.2 실험 결과 및 분석

2.2.1 LIBS, Raman 레이저 스펙트럼 결과

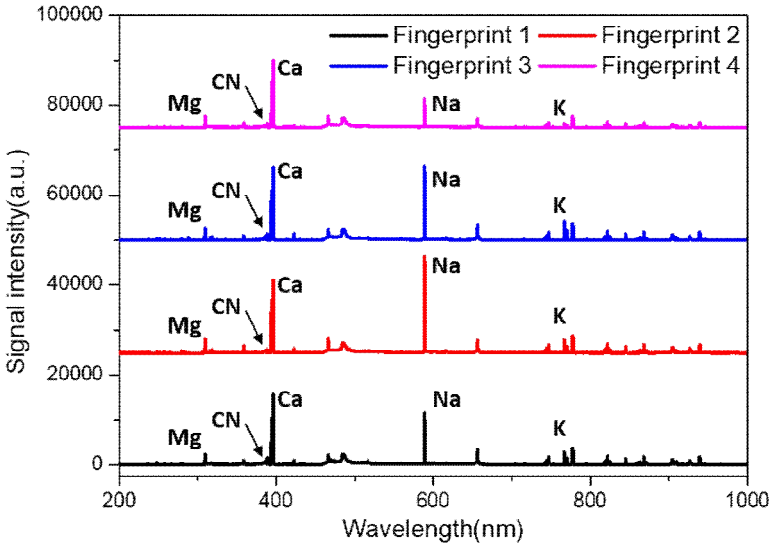


그림 3.3 네 가지 유류 지문의 LIBS 스펙트럼

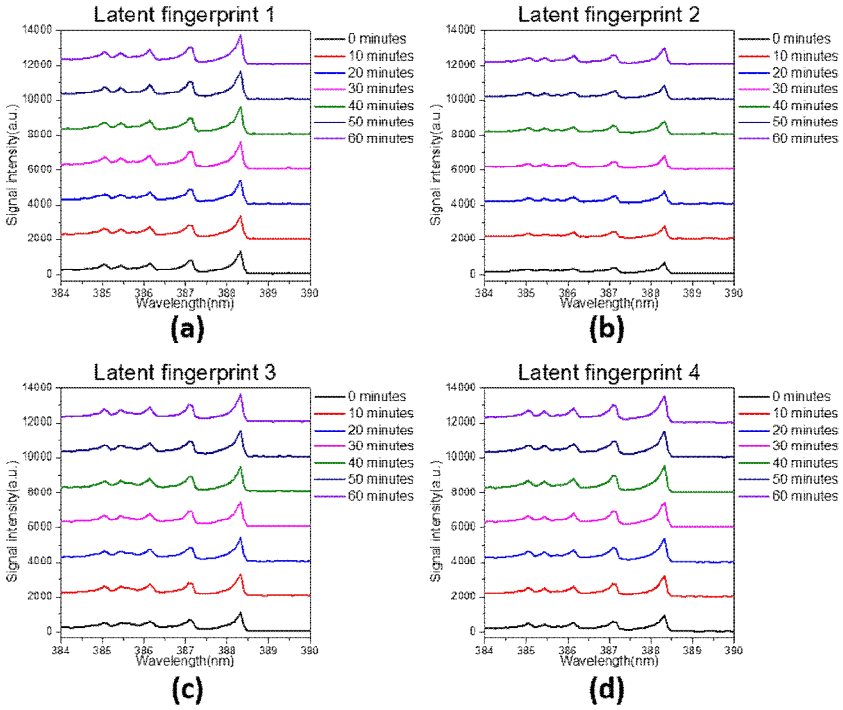


그림 3.4 네 가지 유류 지문의 시간변화에 따른 CN band LIBS 스펙트럼

알루미늄 판위에 하나의 유류 지문을 묻히고, 시간이 10분씩 지남에 따라 LIBS 실험을 진행한 결과는 위의 그림과 같다. 최종 시간은 60분이 지난 시간까지 실험을 진행하였다. 위의 그림에서 확인할 수 있듯이 유류 지문은 CN band를 의미 하는 387 nm, 388 nm에서 신호세기가 변화하는 것을 확인할 수 있다. 0~60 분의 시간이 지남에 따라 위의 그래프들에서 확인할 수 있듯이 CN을 의미하는 신호세기가 점차적으로 증가하게 된다. 이는 유류 지문이 외부 공기와 만나 생기게 되는 응축과 수분이 사라 지는 현상 때문에 아미노산과 지방산들이 펩티드 결합을 만들면서 CN 결합의 수와 강도가 즈

가하기 때문이다.

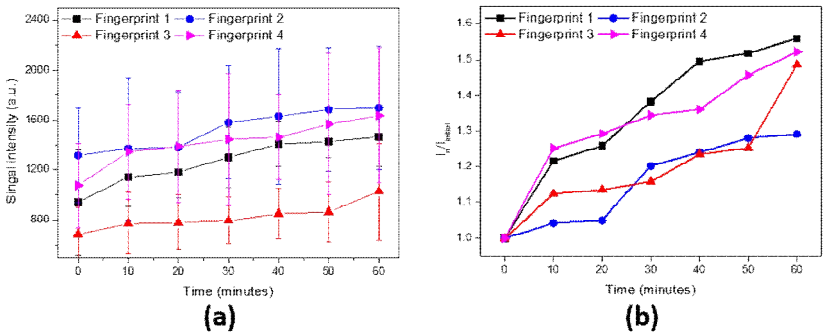


그림 3.5 알루미늄 판위에서의 유류 지문의 CN band 신호세기 상대적 변화 과정(a), 알루미늄 판위에서의 유류 지문의 CN band 신호세기 절대적 변화 과정(b)

위의 그림 3.5는 CN band에서 가장 높은 신호 대 잡음비를 가지는 388.56 nm 파장에서의 신호를 기반으로 나온 결과이다. 위의 결과에서 확인할 수 있듯이, 시간이 지남에 따라 CN band를 의미하는 신호세기는 지속적으로 상승하는 것을 확인할 수 있으며, 절대적인 변화량을 비교해보면 거의 일정한 변화폭을 가지는 것을 확인할 수 있다. 하지만 실험 결과 1시간이 지난 경우에는 신호세기가 saturation이 일어나게 되고, 신호 세기의 변화가 없이 일정하게 유지되는 것을 확인할 수 있다. 이는 지문의 응축 및 수분이 날라가는 과정이 1시간 내에 주도적으로 일어난다는 것으로 해석할 수 있으며, 지문 수사과정에서 1시간이 넘긴 지문에 대해서는 LIBS 방식이 효율적이지 않을 수 있다는 가정을 해볼 수 있다. 그러나 본 연구는 기본적으로 시간이 지남에 따라 유류 지문의 LIBS 스펙트라가 변화가 만들어 진다는 것을 확인하였다.

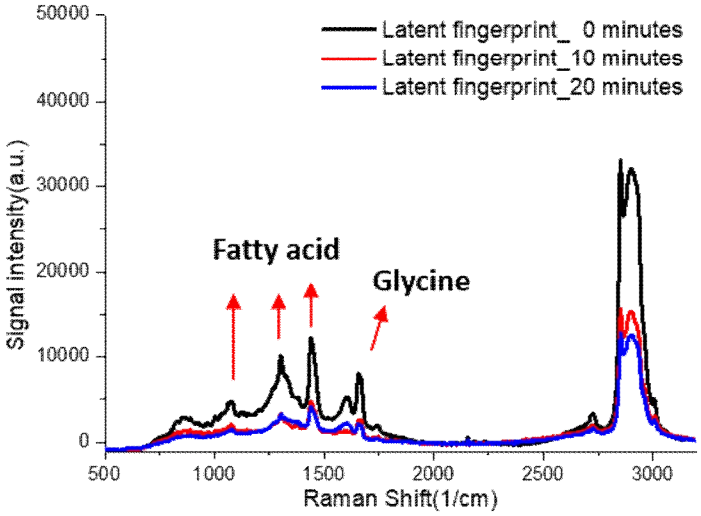


그림 3.6 시간이 지남에 따른 Raman 분광법 레이저 스펙트럼

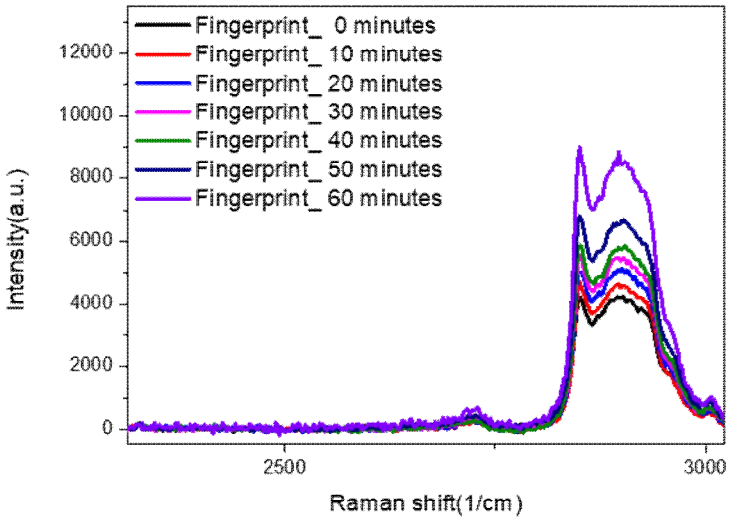


그림 3.7 시간이 지남에 따른 fatty acid의 Raman 분광법 레이저 스펙트럼

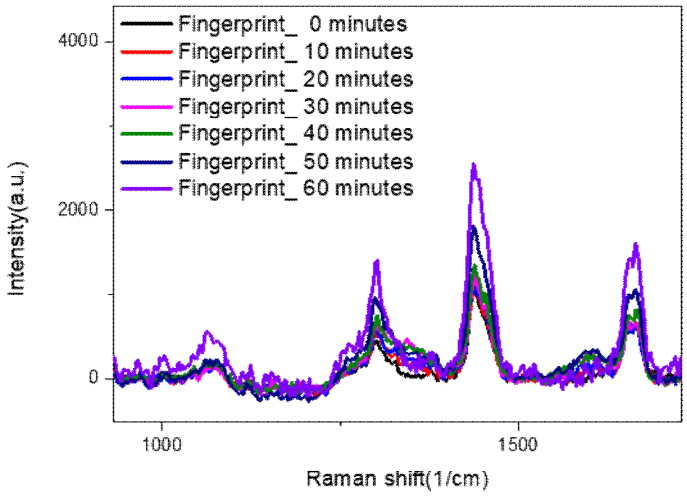


그림 3.8 시간이 지남에 따른 fatty acid의 Raman 분광법 레이저 스펙트럼

라만 분광법을 사용하여 알루미늄 판위에서 시간이 지남에 따라 유류 지문의 레이저 스펙트럼을 비교하면 위의 그림 3.6 과 같은 결과를 도출할 수 있다. 위의 그림에서 확인할 수 있듯이, CC band를 의미하는 1531 raman shift에서 시간이 지남에 따라 신호의 세기가 상승하는 것을 확인할 수 있다. 또한 CN band를 의미하는 신호인 1600 1/cm 에서도 신호세기가 상승하는 것으로 볼 때, 1시간 내에서는 응축 현상과 수분이 사라지는 현상이 주도적으로 일어나고 결과적으로 펩티드 결합등으로 인하여 CC, CN band의 결합이 강해지고 개수 역시 상승한다라고 추정할 수 있다. 이는 시간이 1시간이 지난 후에 실험한 결과와 차이를 가지는데 아래 그림 3.9, 3.10, 3.11 에서 확인할 수 있듯이 시간이 1시간이 지난 후에는 응축현상과 타수분 현상이 주도적으로 진행되지 않아, 각 band의 신호세기가 변함이 없는 것을 확인할 수 있다.

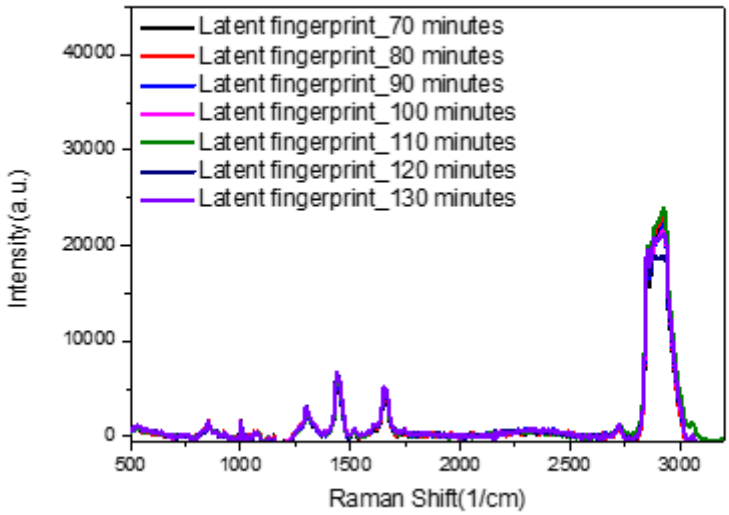


그림 3.9 공기에 노출된 지 1시간이 지난 후, 시간이 지남에 따른 유류 지문의 Raman 분광법 레이저 스펙트럼

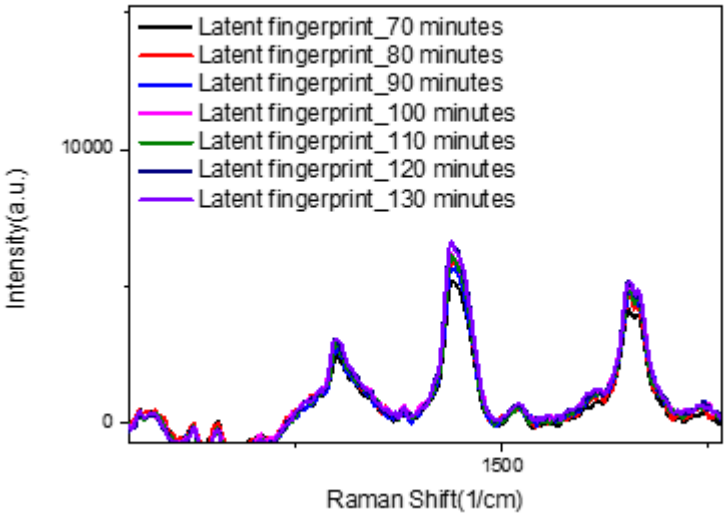


그림 3.10 공기에 노출된 지 1시간이 지난 후, 시간이 지남에 따른 fatty acid의 Raman 분광법 레이저 스펙트럼

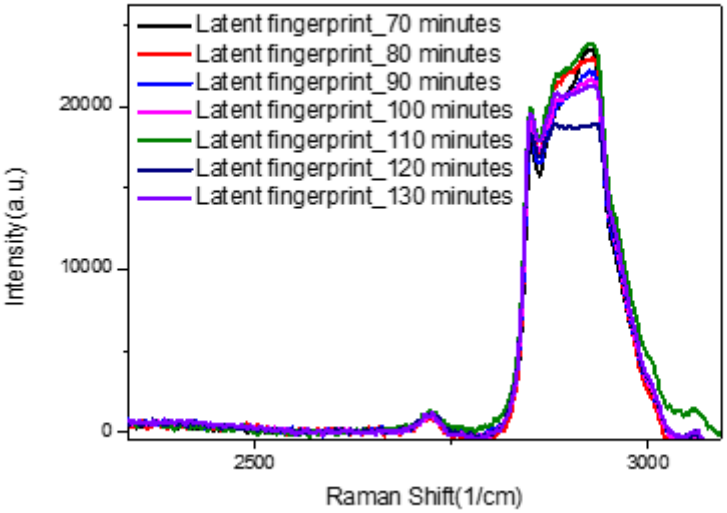


그림 3.11 공기에 노출된 지 1시간이 지난 후, 시간이 지남에 따른 fatty acid의 Raman 분광법 레이저 스펙트럼

3.2.2 출처가 같은 유류 지문의 다변량 분석법 결과

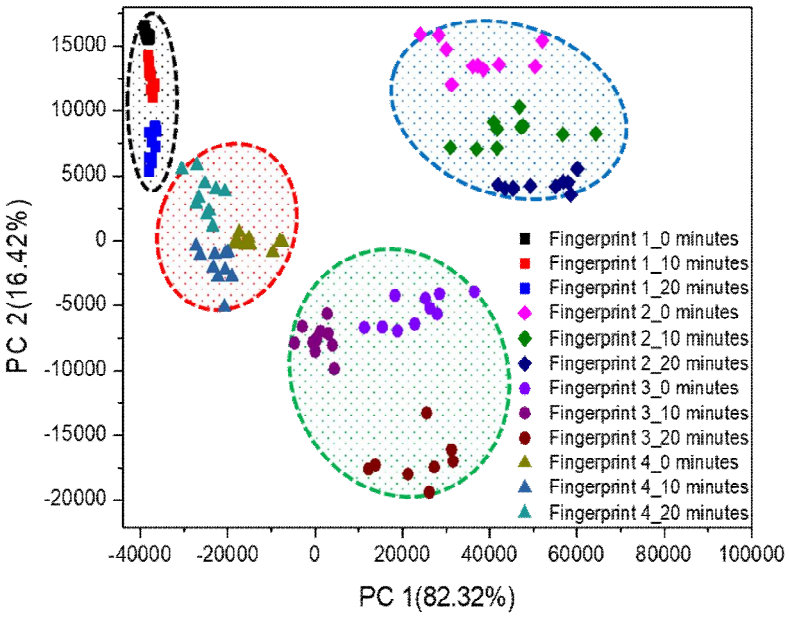


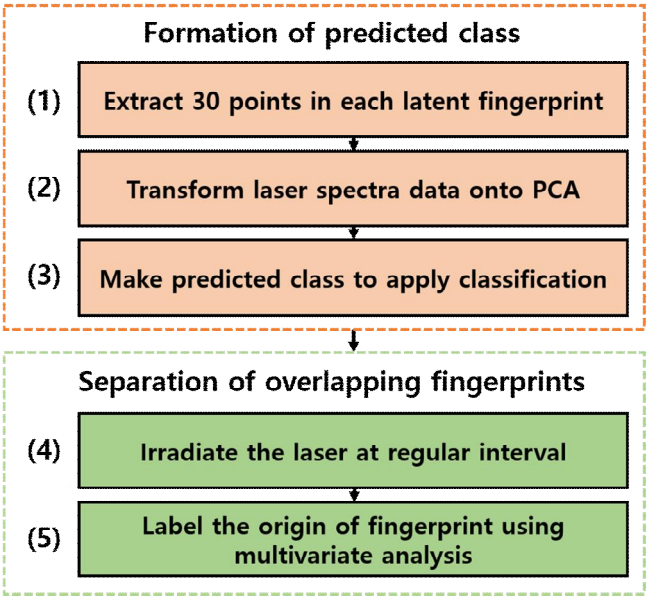
그림 3.12 4가지 유류 지문의 시간이 변함에 따른 PCA 분석 결과

본 연구에서는 주성분 분석인 PCA를 기반으로 사용할 수 있는 SIMCA와 PLS-DA 분류 방식을 사용하였다. 먼저 PCA는 상대적으로 높은 차원의 데이터를 일정한 기준으로 다시 병렬하는 방식이다. 이후 가장 백터를 표현하기 쉬운 2~3 개의 백터만을 추출하고 추출된 백터만을 이용하여 2차원 혹은 3차원 공간의 한점으로 레이저 스펙트럼을 옮기게 된다. 결과적으로는 본 연구에서는 13000개 정도의 데이터를 가지는 레이저 스펙트럼이 단순히 x, y 포인트의 정보를 가지는 low data로 변화하게 되는 것이다. PCA는 이후 분류 방식의 기본이 되는 분류 방식이다. 위의 그림 3.12와 마찬가지로 4개

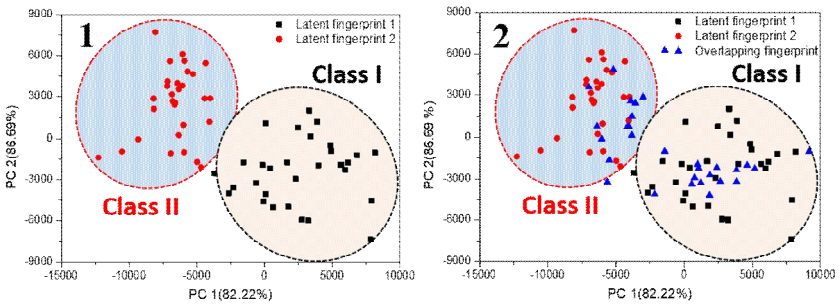
의 유류 지문에 대하여 그리고 시간이 지남에 따라 10개씩의 레이저 스펙트럼을 분석하였을 때 4가지의 유류 지문이 지문의 종류대로 그리고 시간이 변함에 딸 분류가 되는 것을 확인할 수 있다. PCA 결과로 볼 때 추후 SIMCA와 PLS-DA 방식을 사용하였을 때도 충분히 유류 지문의 출처를 추정하고 분류할 수 있음을 확인하였다.

2.2.3 출처가 다른 겹친 지문 분리 알고리즘

본 연구에서는 우선적으로 출처는 같지만 시간 차이를 10분에서 20분 정도 두고 겹쳐진 두 지문의 개별적인 30개의 레이저 스펙트럼을 이용하여 이후 SIMCA와 PLS-DA로써 분류 될 수 있는 기준을 만들었다. 30개의 선별된 레이저 스펙트럼들은 실제 분류가 사용되는 시점에서는 사용되지 않았다. 즉 labeling을 위해 사용된 레이저 스펙트럼들은 레이저 스캐닝을 통해서 도출된 데이터는 아니다. 최종적으로 레이저 스캐닝을 거치고 레이저 스캐닝의 모든 점을 PCA 데이터로 환원시킨다. 즉 SIMCA, PLS-DA 방식을 사용하여 분류를 할 수 있게 되는 것이다. 그림 3.13 (b)는 알고리즘의 도식을 알기 쉽기 표현한 것으로 검정색과 빨강색의 점들은 labeling을 할 수 있는 class를 만드는 점들기고 이후에 등장하는 파란색 삼각형은 지정된 class에 배정되어 본 레이저 스펙트라가 어떠한 유류 지문의 레이저 스펙트라인지 판단하는 것이다.



(a)



(b)

그림 3.13 시간에 따른 겹친 지문 분리 알고리즘 도식도

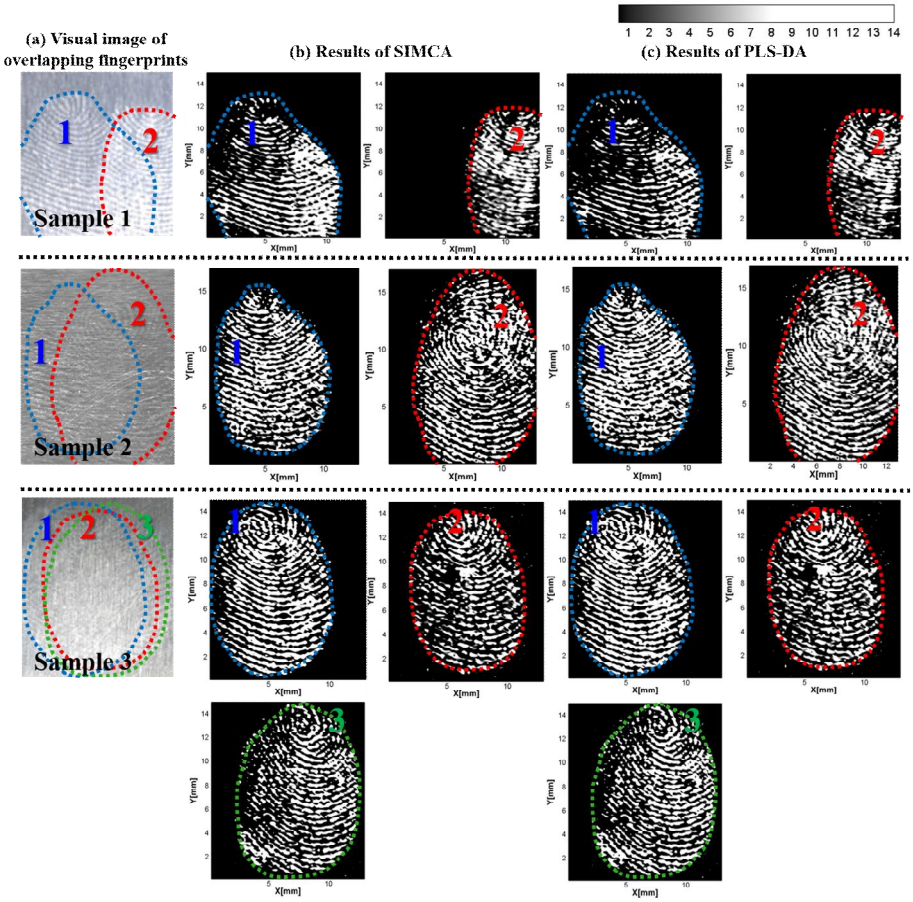


그림 3.14 출처가 같은 겹친 지문 분리 결과

제 4 장 결론

범죄 현장에서 빈번하게 등장하는 겹친 유류 지문을 분리하고 시각적으로 복원하는 연구에 대한 결과이다. 이전의 겹친 지문 분리 방식은 컴퓨터 이미징 방식에 초점이 맞춰져 있었으나 이러한 방식은 시작점을 지정해주어야 분리 알고리즘이 작동이 된다는 점, 화학적 전처리를 이용하여 지문의 선을 선명하게 하는 작업이 필요하다는 점, 화학적 전처리 와중에 지문의 화학적 성분이 변화될 수 있다는 단점들이 존재한다. LIBS 방식은 화학적 전처리 없이 원자 성분과 대략적인 분자 구조를 추정할 수 있는 방식으로 본 연구에서는 LIBS를 이용한 지문 출처 추정과 2차원 화학적 복원의 수단으로써 사용되었다.

지문은 사람이 살아온 환경에 영향을 받는데, 식습관 거주 지역, 수면 습관, 복용중인 약의 유무 등의 영향으로 사람의 유류 지문은 화학적인 성분 차이를 가지게 된다. 이러한 점을 기반으로 본 연구는 LIBS 레이저 스펙트럼의 차이를 가지는 것을 확인하였다. 레이저 스펙트럼의 차이는 역으로 레이저 스펙트럼만을 가지고 출처가 다른 지문의 경우에는 분리 및 복원이 가능하다는 결론을 도출할 수 있었다. 이를 확인하는 과정으로 다변량 분석법인 PCA, SIMCA, PLS-DA와 같은 방식들을 사용하여 출처가 다른 지문의 출처를 추정하는 정확도에 대한 연구를 진행하였으며 최종적으로는 90% 이상의 확률로 지문의 출처를 알아낼 수 있음을 확인하였다. 물론 모든 사람의 지문 출처를 알아낼 수는 없겠지만 2개 혹은 3개의 겹친 지문의 경우에는 출처를 나누고 분리 및 복원이 가능하다는 것을 확인하였다.

또한 시간에 따른 출처가 같은 겹친 유류 지문에 대한 분리 역시 본 연구에서 진행하였다. 유류 지문이 일상적인 대기와 반응하여

만드는 현상인 condensation 현상은 LIBS과 Raman 레이저 스펙트럼에서 CN, CC, COOH의 신호 세기에 영향을 주었고, 결과적으로는 60분정도의 짧은 시간 안에서 겹친 지문이 만들어지는 경우에 지문을 출처가 다른 겹친 지문을 분리할 때와 동일한 방식으로 분리할 수 있음을 확인하였다.

참고문헌

[1] Leon J Radziemski "From LASER to LIBS, the path of technology development", Spectrochemica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, Vol.57, Issue 7. 2002.

[2] David W. Hahn, and Nicolo Omenetto "Laser-Induced Breakdown Spectroscopy(LIBS), part I : Review of Basic Diagonostics and Plasma-Particle Interactions: Still-Challenging Issues Within the Analytical Plasma Community", Applied Spectroscopy, Vol.64, Issue 12. 2010.

[3] Soo-Jin Choi, and Jai-ick Yoh, "Precision exploration of spce resources using laser-induced breakdown spectroscopy", Journal of Korean Society for Aeronautical and Space Sciences, Vol.39, No 5. 2011.

[4] S.H. Lee, H. Do, J.J. Yoh, Simultaneous optical ignition and spectroscopy of a two-phase spray flame, Combustion and Flame, 165 (2016) 334-345.

[5] Jun-Ho Yang, Soo-Jin Choi, and Jai-ick Yoh, "Towards recinstruction of overlapping fingerprints using plasma spectroscopy", Spectrochemica Acta Part B, Vol. 134, 2017, 25-32.

[6] Alian Wang, Brandley L. Jolliff, and Larry A. Haskin, “Raman spectroscopy for a method for mineral identification on lunar robotic exploration missions“, Journal of geophysical research, Vol 100, 1995

[7] Javier Moros and Jose Javier Laserna, “New-Raman-Laser-Induced Breakdown Spectroscopy Identity of Explosives Using Parametric Data Fusion on an Integrated Sensing Platform”, analytical chemistry, Vol 83, 2011, 6275-6285.

[8] M. Abdelhamid, F. J. Fortes, M. A. Harith, and J. J. Laserna, Analysis of explosive residues in human fingerprints using optical catapulting-laser-induce breakdown spectroscopy. J. Ana. At. Spectrum, 2011, 26, 1445-1450.

[9] P. Lucana, I. Gaona, J. Moros, and J. J. Laserna, Location and detection of explosive-contaminated human fingerprints on distant targets using standoff laser-induce breakdown spectroscopy. Spectrochemica Acta Part B 2013, 85, 71-77.

[10] J. Feng, T. Shi, and J. Zhou, Robust and Efficient Algorithms for Separating Latent Overlapped Fingerprints, IEEE Transactions on Information Forensic and Security 2012, 1498-1510

[11] B. Stojanovic, A. Neskovic, and O. Marques, A novel neural network based approach to latent overlapped fingerprint separation, Multimed Tools Appl 2016, doi:10.1007/s11042-016-3696-4

[12] R. Bradshaw, W. Rao, R. Wolstenholme, M.R. Clench, S. Bleay, S. Francese, Separation of overlapping fingermarks by Matrix Assisted Laser Desorption lonisation Mass Spectrometry Imaging, Forensic Science International 2012, 222, 318-326

[13] N. E. Archer, Y. Charles, J. A. Elliott, and S. Jickellss. “Changes in the lipid composition of latent fingerprint residue with time after

deposition on a surface". Forensic Science International 2005. 154(2): 224-239.

[14] R. S. Croxton, M. G. Baron, D. Butler, T. Kent, and V. G. Searss. "Variation in amino acid and lipid composition of latent fingerprints". Forensic Science International 2010. 199(1): 93-102.

[15] J. S. Day, H. G. Edwards, S. A. Dobrowski, and A. M. Voices. "The detection of drugs of abuse in fingerprints using Raman spectroscopy I: latent fingerprints". Spectrochimica Acta Part B. 2004. 60(3): 563-568.

[16] M. Schott, R. Merkel, J. Dittmann, Sequence detection of overlapping fingerprints using a short-term aging feature, IEEE WIFS, (2012).

[17] N. E. Archer, Y. Charles, J. A. Elliot, and S. Jickells, Changes in the lipid composition of latent fingerprint residue with time after deposition on a surface, Forensic Science International, 154 (2005) 224-239.

Abstract

A study on separation of overlapping fingerprints using laser-induced breakdown spectroscopy combined with multivariate analysis

Jun-Ho Yang
Department of Mechanical and Aerospace Engineering
The Graduate School
Seoul National University

In this paper, separation of overlapping fingerprints was performed using laser-induced plasma spectroscopy (LIPS) signal. In the case of latent fingerprints of different persons, it was confirmed that the difference of specific chemical components (K, Mg, Ca, O, Na) existed, and based on this chemical characteristics, it was possible to discriminate and separate the fingerprint's sources according to the type of latent fingerprint using multivariate analysis. Finally, it was possible to visually separate and reconstruct overlapping latent fingerprints in the form of a two-dimensional chemical distribution using a laser scanning technique. It is confirmed that two or three or more overlapping latent fingerprints can be stably separated. In addition, even in the same fingerprint, when the moisture of the

fatty acid and the amino acid disappears based on the time difference of the fingerprint, the hardening phenomenon occurs, which causes the bond such as peptide bond. As a result, it was confirmed that the signal intensity of LIBS and Raman of CN and CC band increase. Based on this phenomenon, it was possible to distinguish the LIBS spectra using a multivariate analysis method and reconstruct the overlapping fingerprints in the form of a two-dimensional chemical distribution.

Keywords : Laser-Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS), Latent fingerprint, Overlapping fingerprints, Multivariate anaysis, Raman spectroscopy

Student Number : 2016-20744