

Поиск наночастиц на изображениях сканирующей зондовой микроскопии с помощью методов глубокого машинного обучения

Окунев А.Г.^{1,2}, Нартова А.В.^{2,1}, Матвеев А.В.^{1,2}

¹Новосибирский государственный университет, ул. Пирогова, д. 1, г. Новосибирск, 630090, Россия

²Институт катализа им. Г.К. Борескова СО РАН, пр. Ак. Лаврентьева, д. 5, г. Новосибирск, 630090, Россия

okunev73@mail.ru, matveev.nsu@mail.ru, avnartova@gmail.com

Аннотация. В работе представлены результаты применения методов глубокого обучения для автоматического поиска платиновых наночастиц, нанесенных на высокоориентированный пиролитический графит (ВОПГ), на изображениях, которые получены методом сканирующей туннельной микроскопии (СТМ). В работе использовалась нейронная сеть CascadeRCNN. Обучение проходило на массиве данных, содержащих 10 СТМ-изображений с 1918 наночастицами. Для верификации использовали 5 изображений с 2052 наночастицами. В результате, обученная нейронная сеть способна распознавать наночастицы с точностью 50,8 %. Наночастицы указываются как четкие контуры, что необходимо для дальнейшей обработки результатов. Проведено сравнение полученных результатов с результатами использования других программных продуктов. Показано преимущество применения методов глубокого машинного обучения для автоматического поиска частиц.

Ключевые слова: распознавание образов, глубокие нейронные сети, сканирующая туннельная микроскопия, наночастицы

1 Введение

В гетерогенном катализе, как правило, катализатор состоит из системы неактивного носителя и нанесенного на него активного компонента, часто в виде наночастиц, на которых проходит каталитическая реакция с получением продукта. Одной из основных характеристик активности катализатора является «частота оборота» реакции (turnover frequency, TOF), определяемой как количество продукта, полученного на одном активном центре в единицу времени [1]. Для этого необходимо определение параметров частиц (количество, размер, площадь), для чего используют различные физико-химические методы исследования. Например, просвечивающая электронная микроскопия, анализ удельной поверхности, зондовые методы. При определении характеристик катализатора необходимым также является определение статистических параметров наночастиц, в частности, распределение по размеру. Для этого, как правило, необходимым является обработка данных не менее чем 100 частиц. В случае применения зондовых методов, в том числе сканирующей туннельной микроскопии широкое применение получил программный продукт WSxM [2], позволяющий проводить измерение параметров частиц оператором. В программе также реализован режим «flooding» для автоматического выделения частей изображения выше пороговой и нахождения их центров. Однако полноценного режима автоматического поиска объектов и определения их размеров в

WSxM не реализовано. Кроме метода «flooding», существуют другие программы, использующие похожий подход для нахождения контуров объектов.

Начиная с 2012 года активно развивается новый подход к анализу изображений, который: а) позволяет учитывать контекст, в котором находится объект; б) позволяет использовать изображения с отмеченными объектами для обучения распознающего программного обеспечения в автоматическом режиме. В основе нового подхода лежат глубокие сверточные нейронные сети, описанные в работе [3].

Первые нейронные сети использовали, главным образом, для классификации изображений. Однако в настоящее время программные продукты на основе глубоких нейронных сетей могут как определять тип объекта, так и выполнять семантическую сегментацию изображения – то есть идентифицировать принадлежащие этому объекту пиксели [4, 5].

Цель данной работы заключается в разработке сервиса для автоматической обработки изображений сканирующей туннельной микроскопии, поиска на них наночастиц и определения их размера.

2 Методы и подходы

В работе использовали модельный катализатор – наночастицы платины, нанесенные на высокоориентированный пиролитический графит (ВОПГ). Нанесение частиц осуществлялось методом термического напыления в вакууме [6].

Получение изображений методом СТМ проводили на приборе RHK UHV (RHK Technology SPM 100). Для сбора данных использовали программное обеспечение XPMPro 1.2.3.4 по технологии RHK для прибора SPM100. В работе использовали изображения СТМ, которые были получены из исходных данных с помощью программного обеспечения WSxM [2]. Изображения дополнительно не обрабатывались, сглаживание, удаление шумов и т.п. обработка с целью улучшения качества не проводилась, поскольку: а) нейронная сеть должна работать с исходными данными, дополнительная обработка искажает изображение, часть данных может быть потеряна; б) обработка требует дополнительного труда оператора; в) не везде возможна.

Тренировочный сет содержал 10 размеченных СТМ-изображений, пример приведен на Рис. 1, общее количество наночастиц – 1918 шт. Разметка проводилась в программе labelme [7]. Для верификации обученной сети использовали 5 СТМ-изображений с общим количеством частиц, определенных оператором, 2052 шт.

В работе использовали нейронную сеть CascadeRCNN [8], предварительно обученную на датасете COCO [9]. Нейронная сеть была дообучена на 10 тренировочных изображения в течение 500 эпох со скоростью обучения 0.001 в эпохах 0-99, 0.0001 в эпохах 100-250 и 0.00001 далее. В качестве метрики качества предсказания наночастиц использовали среднюю усредненную точность – mAP [10] с набором пороговых значений [0.5, 0.55, 0.6, 0.65, 0.7, 0.75, 0.8, 0.85, 0.9, 0.95].

Обучение и распознавание проводили на графическом сервере ВКИ НГУ HPE Apollo 6500 Gen10 с 8-ю графическими ускорителями NVIDIA Tesla V-100.

3 Результаты

Результат поиска наночастиц обученной нейронной сетью представлен на Рис. 2, б). Показано также: а) исходное изображение и в) разметка оператором. Видно, что частицы четко определены, каждая из них является объектом, что необходимо для дальнейшей работы с ними. Как правило, изображения частиц, которых сеть не определила, низкого качества, и требуют доопределения оператором. Из 254 частиц, размеченных оператором, сетью найдено 175, точность обнаружения составляет 68 %. В целом, на 5 изображениях, используемых для верификации, из 2052 частиц, размеченных оператором, нейронной сетью найдено 1043 (см. Приложение 1), таким образом точность определения составляет 50,8%, Таблица 1.

Хорошее совпадение mAP для тестового и тренировочного датасетов свидетельствует об отсутствии переобучения сети.

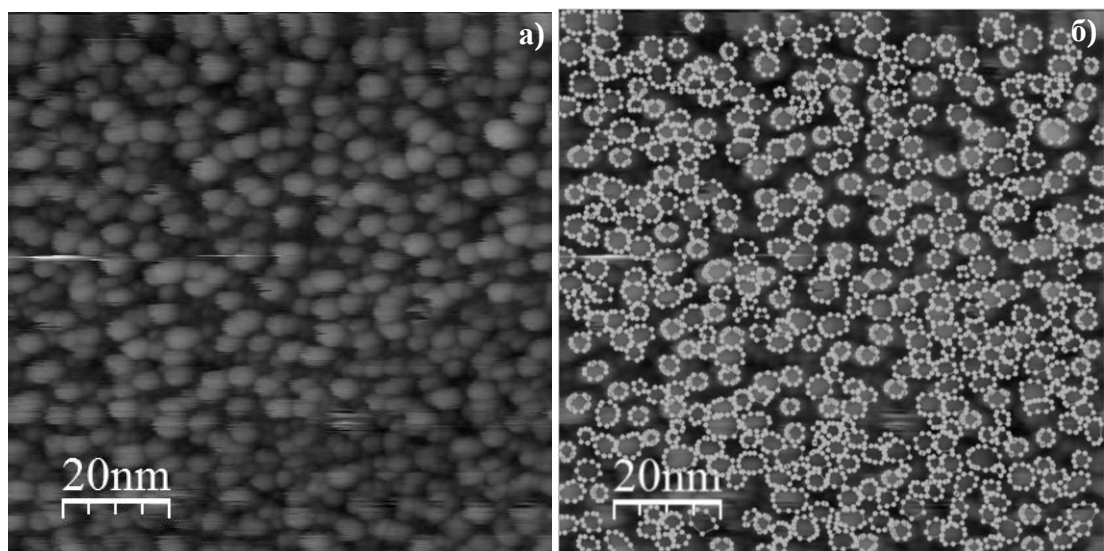


Рис.1. СТМ-изображения наночастиц платины, нанесенных на ВОПГ, которые использованы для обучения нейронной сети: а) исходное изображение; б) размеченное оператором, 443 частицы.

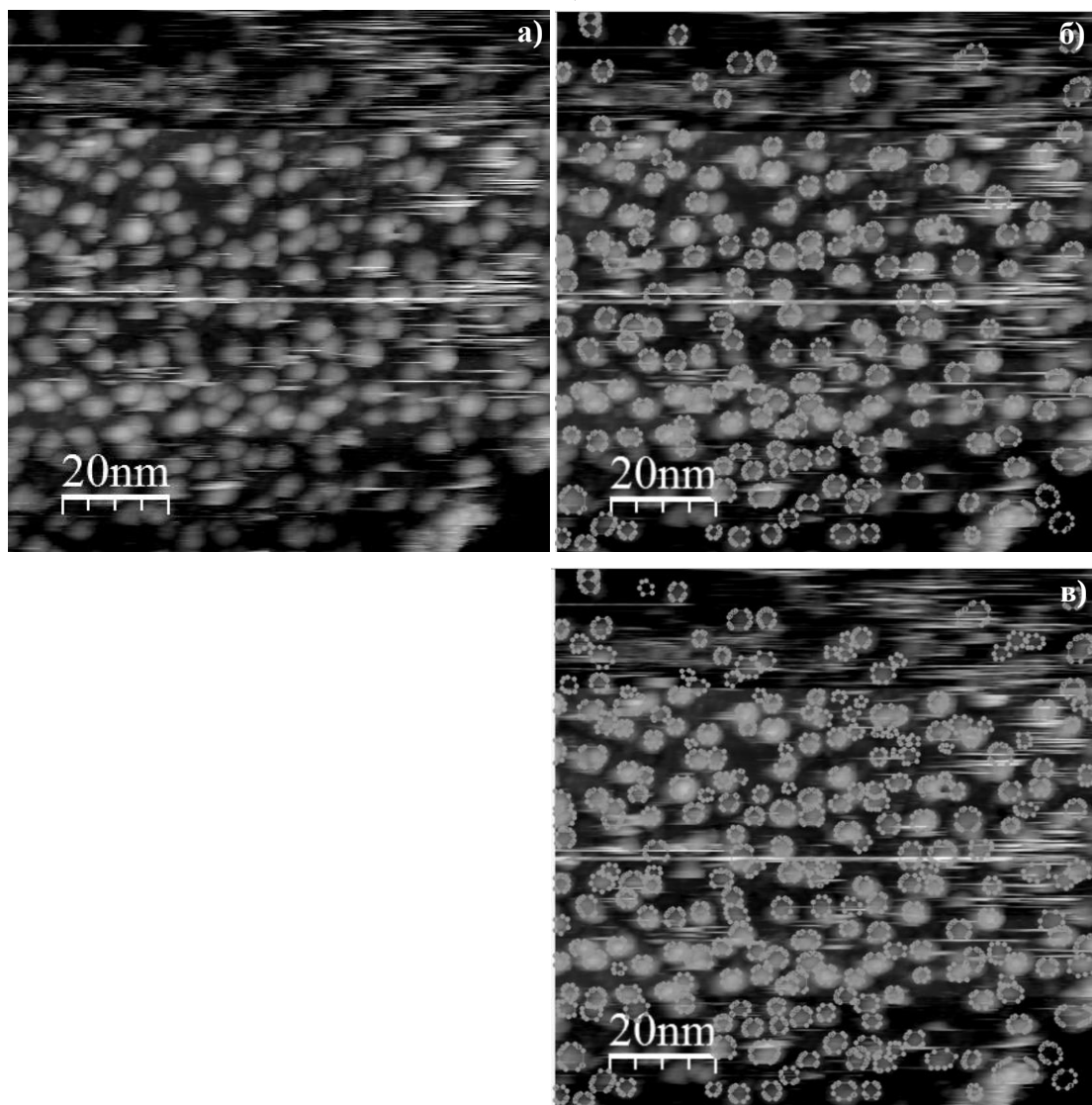


Рис.2. СТМ-изображения наночастиц платины, нанесенных на ВОПГ: а) исходное изображение; б) результат автоматического поиска частиц обученной нейронной сетью, 175 частиц; в) частицы, дополнительно размеченные оператором, всего 254 шт.

Таблица 1. Количество наночастиц платины на ВОПГ, определенных оператором и нейронной сетью на 5 СТМ-изображениях, используемых для верификации, а также mAP для обработанного изображения на тренировочном и тестовом датасетах.

Тестовый датасет			
<i>Шифр изображения</i>	<i>mAP</i>	<i>Количество частиц, определенных нейронной сетью</i>	<i>Количество частиц, определенных оператором</i>
1	0.47	276	549
2	0.48	223	440
3	0.33	161	412
4	0.46	200	397
5	0.64	174	254
Итого	0.48	1043	2052

Тренировочный датасет			
<i>Шифр изображения</i>	<i>mAP</i>	<i>Количество частиц, определенных нейронной сетью</i>	<i>Количество частиц, определенных оператором</i>
1	0.7	79	79
2	0.78	58	58
3	0.49	69	77
4	0.34	265	443
5	0.34	69	88
6	0.35	241	398
7	0.48	192	252
8	0.86	57	57
9	0.07	48	207
10	0.49	196	260
Итого	0.49	1274	1919

Было проведено сравнение результатов работы обученной нами нейронной сети с результатами, полученными с использованием других программных продуктов, работа которых не основана на применении нейронных сетей.

На Рис. 3, а), приведен результат применения процедуры «flooding» в программе WSxM, знаком «+» указаны центры обнаруженных холмов (hills). Процедура выделяет участки, высота которых выше определенного оператором порога, а также указывает их центры. Как видно, программа слабо применима для изображений, на которых есть участки с градиентом интенсивности, а также шумы, которые программа определяет как объекты. Также в программе отсутствует не только функция автоматического определения размера объектов, но и возможность выгрузки найденных контуров с целью их дальнейшей обработки.

На Рис. 3, б) приведен результат применения фильтра «поиск контуров» в программе для анализа изображений Altami Studio 3.5.0. [11]. Фильтр основан на использовании дочерних фильтров: отрисовывание фигур-разделителей (Draw delimiter measurements); поиск контуров (базовый) (Find contours (base)); отрисовывание автофигур (Draw auto measurements). Выделение объектов происходит путем определения значения порога, разделяющего области распределения яркостей. Если значение яркости определенного пикселя больше порогового значения, то это точка принадлежит объекту, если меньше – фону. Фильтр записывает в пиксель Новое значение в том случае, если его яркость выше средней яркости в радиусе окрестности, заданной параметром «Размер блока». Размер блока – это размер анализируемой области вокруг

пикселя. Чем больше это значение, тем меньше чувствительность фильтра, тем больше шума отсеивается, при этом некоторые детали могут теряться. Чем больше параметр «Значение порога», тем более яркие объекты будут определяться на изображении. Выбор значений параметров «Размер блока» и «Значение порога» не может быть универсальным, он меняется от задачи к задаче, и эти значения должны подбираться вручную для достижения наилучшего результата. Как видно из Рис. 3, б), качество определения контура программой Altami Studio на наших изображениях низкое. Снижает результативность программы отсутствие четких контуров частиц и зашумленность исходных данных. Кроме того, контуры не определяются как объекты, что значительно снижает возможность использования результатов программы для дальнейшего автоматического определения размера частиц.

Таким образом, сравнение результатов работы обученной нами нейронной сети с результатами других программ, не использующих глубокого машинного обучения, показывает, что нейронная сеть может определять наночастицы с хорошей точностью. Не определяются частицы, изображение которых очень низкого качества и требует принятия решения оператором. Кроме того, применение нейронной сети позволяет определять частицы как объекты, что необходимо для дальнейшей работы по уточнению контура наночастиц, автоматическому определению их размера и статистической обработке результатов – получения распределения частиц по размеру и других характеристик.

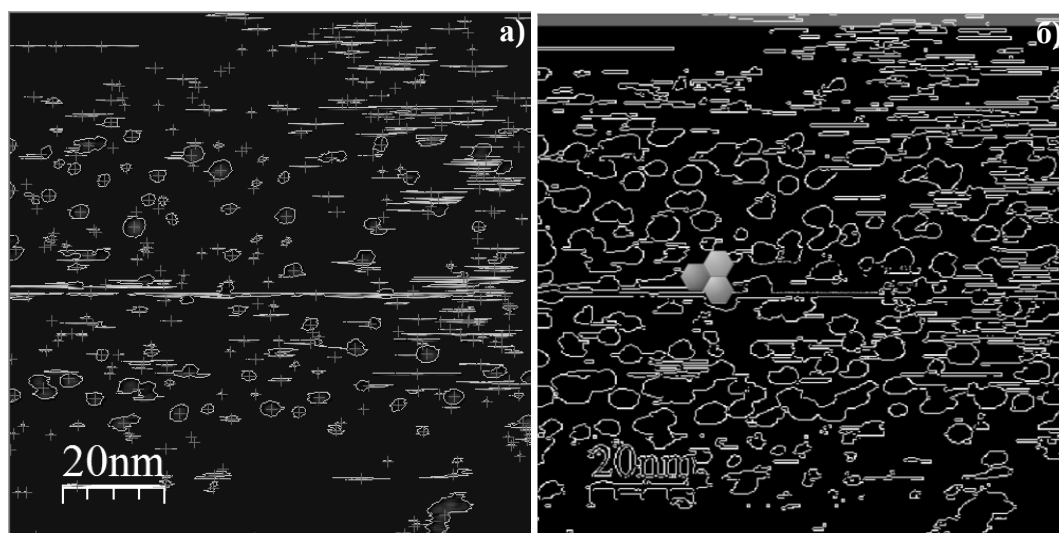


Рис.3. Обработка СТМ-изображения, приведенного на Рис. 2, а): а) результат применения процедуры «flooding» в программе WSxM, указаны центры обнаруженных холмов (hills); б) результат использования фильтра «поиск контуров» в программе Altami Studio 3.5.0., в центральной части рисунка программа помещает логотип компании.

4 Заключение

В работе с целью создания сервиса для автоматического поиска нанесенных наночастиц на СТМ-изображениях была дообучена нейронная сеть Cascade RCNN. Для дообучения использовали 10 СТМ изображений, содержащих 1919 частиц платины, нанесенных на ВОПГ. Верификация проведена на 5 изображениях, содержащих 2052 частицы. Точность определения наночастиц нейронной сетью после дообучения составляет 50,8 %. Частицы выделяются как четкие контуры, что необходимо для дальнейшего использования с целью определения количественных характеристик распознанных объектов. Проведено сравнение полученных результатов с результатами использования других программных продуктов, не основанных на применении методов глубокого машинного обучения. Показано преимущество использованного нами подхода.

5 Благодарности

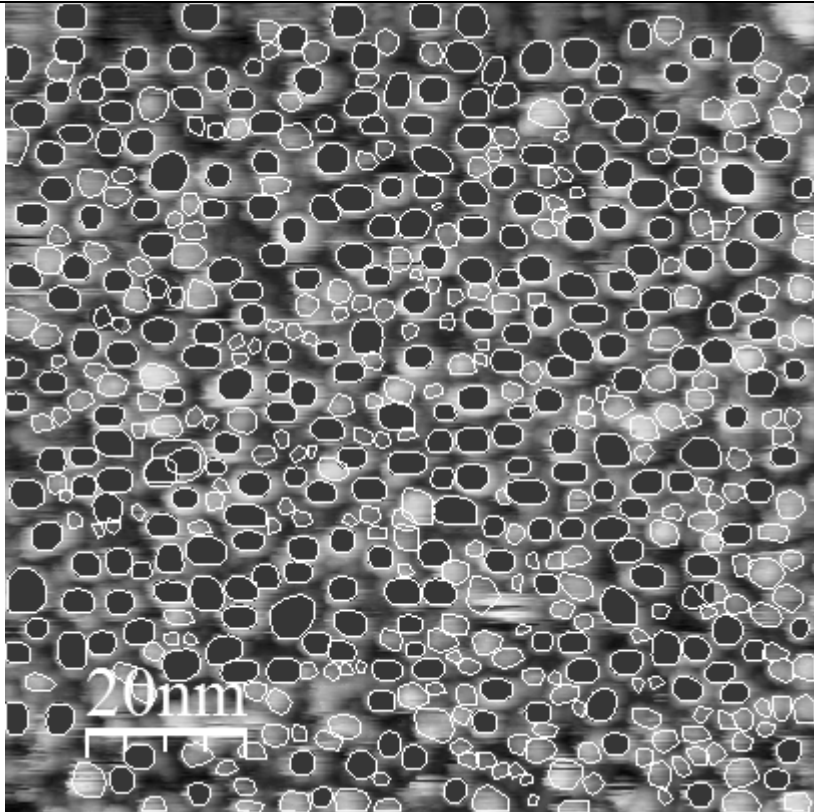
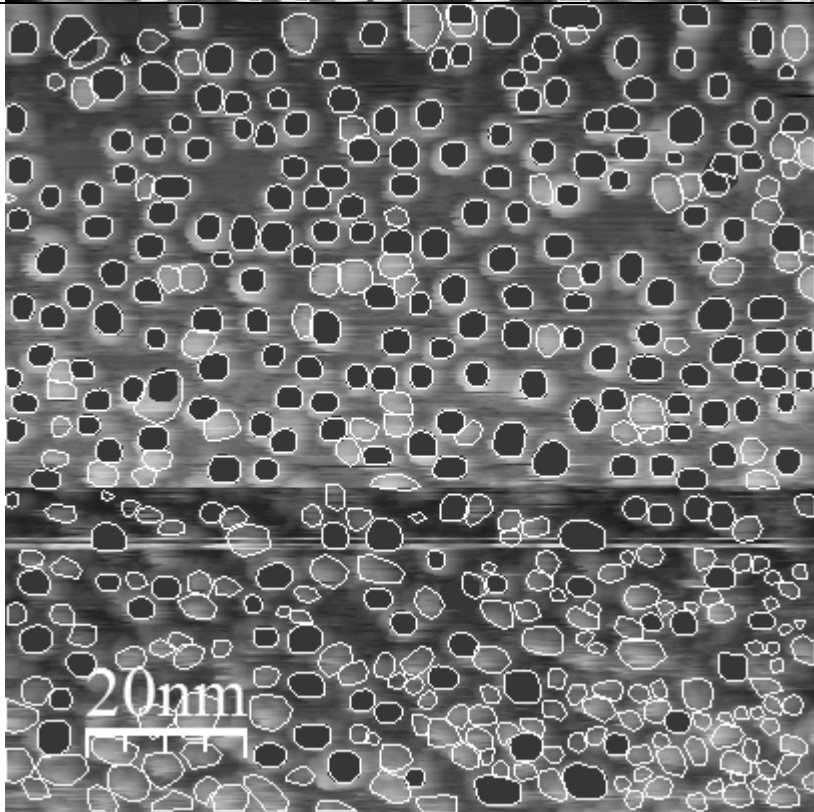
Работа частично выполнена в рамках государственного задания ФГБУН «Федеральный исследовательский центр «Институт катализа им. Г.К. Борескова Сибирского отделения

Российской академии наук» (проект № 0303-2016-0001), а также поддержана из средств Программы повышения международной конкурентоспособности НГУ, 4 этап.

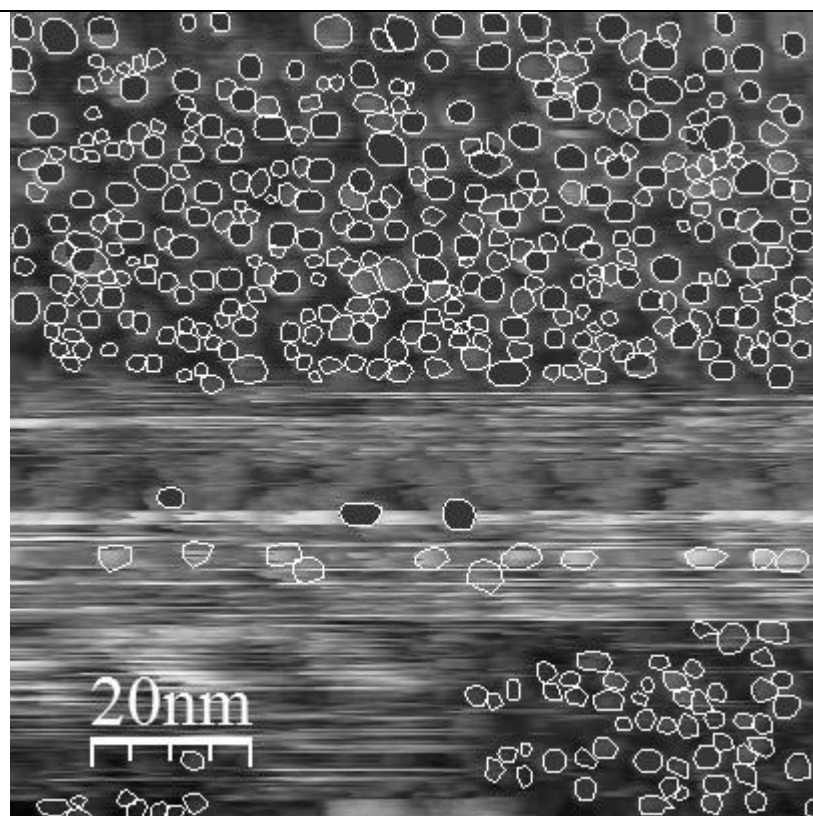
Литература

- [1] Nartova A.V., Kovtunova L.M., Khudorozhkov A.K., Shefer K.I., Shterk G.V., Kvon R.I., Bukhtiyarov V.I. *Influence of Preparation Conditions on Catalytic Activity and Stability of Platinum on Alumina Catalysts in Methane Oxidation*, Applied Catalysis A: General. 2018. V.566. P.174-180. DOI: 10.1016/j.apcata.2018.08.029
- [2] I. Horcas, R. Fernandez, J.M. Gomez-Rodriguez, J. Colchero, J. Gomez-Herrero, A.M. Baro. *WSXM: a software for scanning probe microscopy and a tool for nanotechnology*, Rev. Sci. Instrum., 78 (2007), 013705-1–013705-8, <https://doi.org/10.1063/1.2432410>
- [3] A. Krizhevsky, I. Sutskever, and G. Hinton. *Imagenet classification with deep convolutional neural networks*, In NIPS, 2012.
- [4] Wei Liu, Dragomir Anguelov, Dumitru Erhan, Christian Szegedy, Scott Reed, Cheng-Yang Fu, and Alexander C. Berg. *SSD: Single shot multibox detector*, In ECCV. 2016.
- [5] Kaiming He, Georgia Gkioxari, Piotr Dollar, and Ross Girshick. *Mask r-cnn*, In IEEE International Conference on Computer Vision. 2017.
- [6] Smirnov M.Y., Vovk E.I., Nartova A.V., Kalinkin A.V., Bukhtiyarov V.I. *An XPS and STM Study of Oxidized Platinum Particles Formed by the Interaction between Pt/HOPG with NO₂*, Kinetics and Catalysis. 2018. V.59. N5. P.653-662. DOI: 10.1134/s0023158418050129
- [7] Ketaro Wada, *labelme: Image Polygonal Annotation with Python* (2016), <https://github.com/wkentaro/labelme>
- [8] Zhaowei Cai and Nuno Vasconcelos. *Cascade r-cnn: Delving into high quality object detection*, In IEEE Conference on Computer Vision and Pattern Recognition. 2018
- [9] Lin, T.Y., Maire, M., Belongie, S., Hays, J., Perona, P., Ramanan, D., Doll'ar, P., Zitnick, C.L. *Microsoft coco: Common objects in context*, European Conference on Computer Vision. 2014
- [10] Everingham, M., Van Gool, L., Williams, C.K.I., Winn, J., Zisserman, A. *The pascal visual object classes (voc) challenge*, International Journal of Computer Vision. 2010. V. 88(2). P. 303-338
- [11] <http://altamisoft.ru>

Приложение 1. Результаты распознавания частиц на тестовом датасете. Размеченные оператором частицы выделены белым контуром без заливки. Темно-серой заливкой показана разметка нейросети.

Номер изображения	Иллюстрация разметки
1	 This panel shows a grayscale microscopy image of numerous small, dark, roughly spherical particles. Each particle is outlined with a thin white contour. A white scale bar labeled "20nm" is positioned in the lower-left area of the image.
2	 This panel shows a similar grayscale microscopy image to the first one, featuring many small, dark particles. Like the first panel, each particle is marked with a white contour. A white scale bar labeled "20nm" is located in the lower-left corner.

3



4

