

DOI:10.19651/j.cnki.emt.2106310

基于深度学习的 TEM 纳米材料图像识别与粒径统计

刘淑慧 姚丽英 张仲圆 曾洁

(大连交通大学 电气信息工程学院 大连 116021)

摘要: 对于催化材料,纳米颗粒的大小和形状等结构信息对催化性能有着重要的影响,基于透射电子显微镜图像的纳米颗粒识别与统计是获取这些信息的主要手段。本文提出一种基于深度学习的深度可分离卷积 U-Net 网络架构,以核壳结构纳米材料为数据集,采用交叉熵损失函数、加权交叉熵损失函数、IoU 损失函数和 Dice 损失函数作为优化目标,分别对网络进行训练。分割结果表明 IoU 损失函数和 Dice 损失函数在正负样本不均衡的核壳结构纳米颗粒数据集中性能较好。最后利用训练好的网络,对 TEM 图像分割且进行统计,获取粒径及周长分布等结构信息,为深度学习在催化材料领域的应用提供可行性。

关键词: 透射电子显微镜图像;深度可分离卷积 U-Net;纳米颗粒识别;损失函数

中图分类号: TP18 **文献标识码:** A **国家标准学科分类代码:** 520.6040

Detection and particle size statistics of the TEM nanomaterial images based on deep learning

Liu Shuhui Yao Liying Zhang Zhongyuan Zeng Jie

(School of Electrical and Information Engineering, Dalian Jiaotong University, Dalian 116021, China)

Abstract: For catalytic materials, the size and shape of nanoparticles and other structural information have an important impact on the catalytic performance. The identification and statistics of nanoparticles based on transmission electron microscope images are the main means to obtain these information. In this paper, a deep separable convolutional U-Net architecture based on deep learning is proposed. Taking the core-shell nanomaterial as dataset, cross-entropy loss function, weighted cross-entropy loss function, IoU loss function and Dice loss function are adopted as optimization objectives to train the network respectively. The segmentation results show that the performance of IoU loss function and Dice loss function is better for the dataset of core-shell structure nanoparticles with unbalanced positive and negative samples. Finally, the trained network is used to segment and conduct statistics on TEM images to obtain structural information such as particle size and perimeter distribution, which provides feasibility for the application of deep learning in the field of catalytic materials.

Keywords: transmission electron microscope images; deep separable convolution U-Net; nanoparticle recognition; loss function

0 引言

在催化材料领域,基于透射电子显微镜(TEM)图像纳米材料中颗粒粒径统计分析是表征材料结构,进而了解材料性能一个重要的环节。粒径分析关键步骤是针对纳米颗粒进行识别。在传统 TEM 图像纳米颗粒粒径分析中,通常采用在专业软件(如 ImageJ)中进行人工标注的办法,但这种方法非常耗时和繁琐,且标注的数量有限,获得统计结果准确度有所欠缺,无法准确建立粒径分布和化学性能之间有效的“构效关系”。

因此,需要自动化的方法来识别和统计纳米材料中的粒径。在数字图像处理领域,通常利用二值化^[1]和边缘检测算法,比如 Canny 算法^[2],来进行目标的识别。但 TEM 图像利用电子透射原理成像,放大倍数非常高,干扰和噪声都较大,输出的图像具有对比度不强,边缘模糊等特点,传统算法很难有效。在基于特征提取的机器学习算法中,如空间聚类算法^[3]、熵为基础的算法^[4]等,都需要提前设计待提取特征,对研究人员要求很高,既需要懂得特征工程、图像处理领域知识,又要涉猎催化材料和透射电子显微镜的知识,极大地限制了这类算法的可行性。深度学习方法可

收稿日期:2021-04-06

以克服以上问题,神经网络本身可自动提取特征。卷积神经网络在视觉图像领域获得了广泛的应用^[5-6],且基于卷积神经网络的图像分割算法在自然场景、医疗图像等领域得到了广泛的应用^[7-9],但针对 TEM 图像,文献多采用分水岭分割^[10]、Markov 随机场^[11]等传统算法来尝试图像分割。但鲜有文献将深度学习网络用在纳米材料 TEM 图像,从而对纳米材料进行结构分析。本文将深度学习方法迁移到透射电子显微镜领域来进行 TEM 图像纳米颗粒的粒径分析,验证了方法的有效性。

针对核壳结构的催化剂纳米材料,基于 U-Net 网络^[12]和深度可分离卷积^[13]模块提出一种深度可分离卷积 U-Net 网络,在极大降低计算成本的同时,较好地完成了 TEM 图像前景的提取及纳米小颗粒的识别。并针对采用交叉熵损失函数、加权交叉熵损失函数、IoU (intersection over union) 损失函数和 Dice 损失函数分别作为优化目标时进行实验和对比,结果表明小目标图像分割场景中,相比于前两种交叉熵损失函数,当 IoU 损失函数和 Dice 损失函数作为优化目标时可获得更高精度的图像分割结果。最后,基于图像分割的结果,计算出纳米颗粒的粒径及周长分布,为纳米材料的催化性能分析提供基础,为材料设计提供指导。利用深度学习对 TEM 图像进行纳米颗粒的识别的统计分析,为深度学习网络在电子显微领域图像分析提供了可行性。

1 纳米颗粒识别网络架构

本文采用纳米催化剂材料为核壳结构,如图 1 所示,分为 3 部分,最浅色的部分为背景,黑色部分是催化剂核的部分,即纳米颗粒,由贵金属组成,在核外包裹一层 SiO₂ 核壳,它的作用是避免贵金属团聚,影响催化性能。任务是将纳米颗粒进行分割和统计。

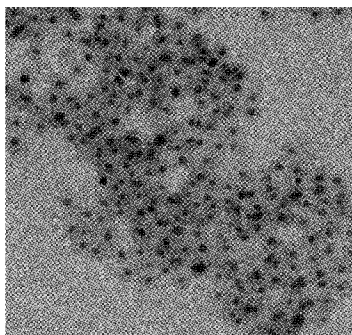


图 1 核壳结构纳米材料 TEM 图

任务的难点是,TEM 图像均是灰度图像,各部分对比度不高,除了背景部分还有核壳部分的干扰,且纹理信息不丰富,无法人工提取特征,需要采用深度学习方法。另外基于 TEM 显微镜附属电脑硬件的限制,需要轻量化的网络,因此本文提出一种基于深度可分离卷积的 U-Net 网络架构来完成纳米颗粒的语义分割。

深度可分离卷积 (depthwise separable convolution) 是普通卷积的一个变形,由 depthwise (DW) 和 pointwise (PW) 两部分组成,是更迅速、更省内存的提取图像特征图的方法。深度可分离卷积因为它独特的计算方式,使得比普通卷积计算量少很多,普通卷积和可分离卷积的基本结构如图 2 所示。

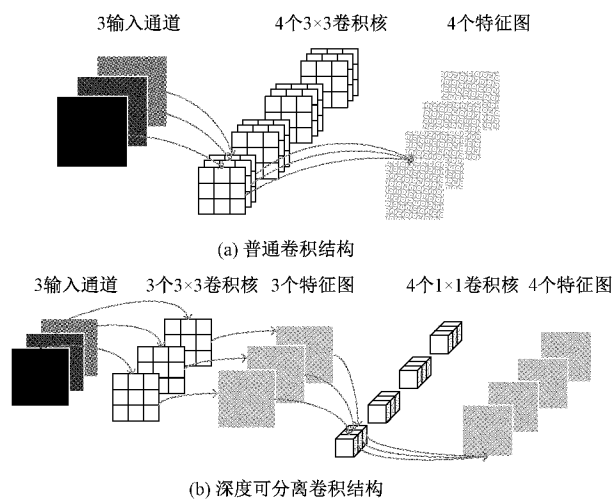


图 2 普通卷积与深度可分离卷积对比

如图 2 所示,卷积核的深度是输入特征图通道数,而深度可分离卷积对输入特征图每个单通道进行卷积,然后对卷积得到的多个通道特征图执行 1×1 卷积进行融合以获得新的特征图。可分离卷积输出特征图感受野和普通卷积一样,但计算量比普通卷积小,且性能损失不大,适合用在电子显微镜图像的实时分割。

U-Net 网络是全卷积神经网络^[14]的一个特例,包括收缩路径 (contracting path) 和扩展路径 (expanding path)。收缩路径主要是捕捉图像中的上下文信息,提取特征图,扩展路径主要是对所要分割出来的前景精准定位。基于深度可分离卷积的 U-Net 在合适层利用可分离卷积来代替传统卷积以降低网络参数量,节省计算成本。具体细节如图 3 所示。

由图 3 可知,收缩路径共进行 4 次下采样,除了对输入图像采用两个 3×3 传统卷积之外,收缩路径中其他涉及到的卷积操作均替换为深度可分离卷积。在每次卷积后加批量归一化^[15] (batch normalization, BN) 和修正线性单元 (rectified linear unit, ReLU) 激活函数操作,用于增强网络的健壮性和非线性能力。扩张路径进行 4 次上采样操作来恢复到和原图分辨率相同的分割结果。扩张路径中针对每个尺度的特征图,与相应的收缩路径中同尺度特征图进行拼接,接着采用 1×1 普通卷积进行特征融合来保证充分利用收缩路径特征图信息,然后采用一次深度可分离卷积,完成特征图进一步融合,接着进行一次上采样完成图像尺寸逐步变大。

本文提出的基于可深度分离卷积 U-Net 参数量为

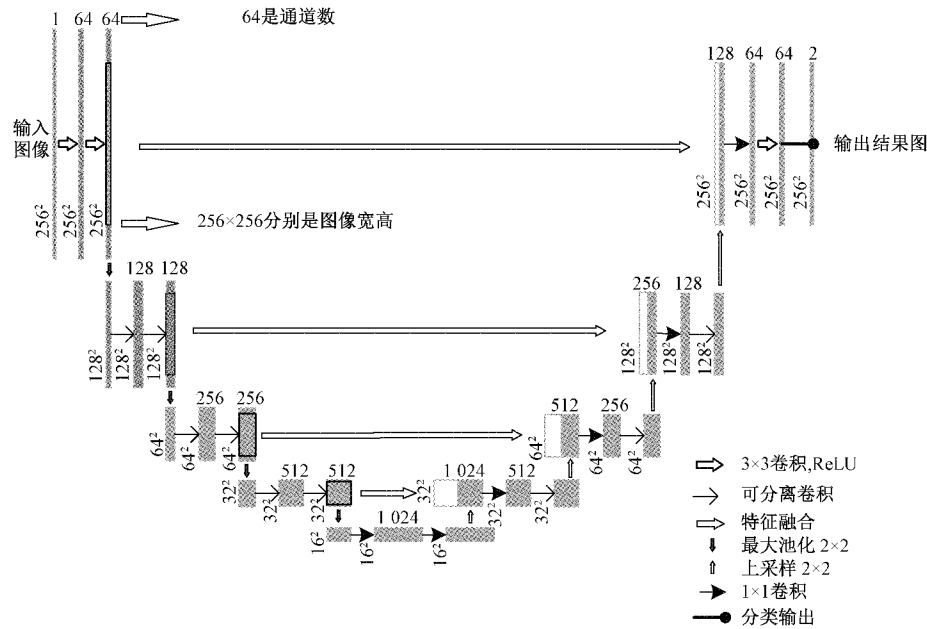


图3 基于深度可分离卷积的U-Net网络架构

5 982 210, U-Net 参数量为 34 894 178, 参数量降为 U-Net 的 17%, 大幅减少计算成本, 适合电子显微镜硬件条件下的实时图像分割。

1.1 评价准则

预测准确率是常用的评价准则, 本样品需要识别的前景是小目标, 采用 IoU^[16] 和 Dice 系数^[17] 作为评价准则更能评估网络的分割结果性能。IoU 通过预测框与真实框的相关度来评价模型的性能, 相关性越大, 模型性能越好, 计算公式为:

$$IoU = \frac{TP}{FP + TP + FN} \quad (1)$$

其中, TP 、 FP 和 FN 分别表示真正类(true positive)、假正类(false positive)、假负类(false negative)。本文采用平均 IoU 作为评价准则, 即前景和背景两部分 IoU 进行平均。

Dice 系数与 IoU 类似, 评估网络分割结果与真实标注之间相似性。在同样情况下, Dice 系数比 IoU 得分要高, 计算公式为:

$$Dice \text{ 系数} = \frac{2TP}{2TP + FP + FN} \quad (2)$$

1.2 损失函数

图像分割中的损失函数通常采用交叉熵损失函数(cross entropy loss), 用于求目标与预测值之间的差距。但本文需要对图像中的小目标进行分割识别, 前景和背景的样本数目不均衡。实验中采用多种损失函数, 并比较其结果, 目的是选取适合于透射电子显微镜图像中小目标分割的损失函数。

1) 交叉熵损失函数

交叉熵损失函数常用于正负样本均衡的图像分割问题中。交叉熵函数的公式如下:

$$L_{cross \text{ entropy}} = - \left(\sum_{i=1}^N y^{(i)} \log \hat{y}^{(i)} + (1 - y^{(i)}) \log(1 - \hat{y}^{(i)}) \right) \quad (3)$$

式中: i 为输入样本, y 表示实际标记值, \hat{y} 表示网络最终输出预测值, N 表示样本数量。

2) 加权交叉熵损失函数

加权交叉熵损失函数的计算公式为:

$$L_{cross \text{ entropy}} = - \left(\sum_{i=1}^N \beta y^{(i)} \log \hat{y}^{(i)} + (1 - \beta)(1 - y^{(i)}) \log(1 - \hat{y}^{(i)}) \right) \quad (4)$$

式(3)中交叉熵损失函数会公平处理正负样本, 当出现正样本占比较小时, 就会被更多的负样本淹没。加权交叉熵损失函数将正负样本赋予不同的加权系数 β 和 $(1 - \beta)$, 提高对正样本的重视程度。

3) IoU 损失函数

IoU 损失函数更专注于小目标, 适合小目标的分割, IoU 的损失函数定义如下:

$$L_{IoU} = 1 - IoU \quad (5)$$

其中, IoU 在式(1)中已给出说明, 此损失函数训练更倾向于挖掘前景区域, 本文核壳结构纳米颗粒数据集是正负样本不均衡的情况。

4) Dice 损失函数

Dice 损失函数与 IoU 损失函数类似, 均关注预测结果和实际标注集合的重合程度, 更适合前景目标较小的场景。其定义如下:

$$L_{dice} = 1 - Dice \text{ 系数} \quad (6)$$

1.3 数据增强

透射电子显微镜 TEM 图片获取成本高, 调试环节耗

时长,因此获取的 TEM 图片数量有限,为了提高图像分割精度,需要进行数据增强操作,扩充训练集和验证集图片的数目。本实验中的数据增强采用翻转、旋转、缩放、裁剪、移位等操作。实验所采用的计算机硬件配置为 Intel(R) Xeon(R) W-2133 CPU @ 3.60 GHz, Windows 10 系统 64 位, NVIDIA GeForce RTX 1080 Ti, 使用 tensorflow 和 keras 搭建神经网络架构。图片大小为 256×256 , 原始张数为 128, 利用数据增强操作对图像进行随机变换, 可扩展到 2 000 余张。80% 数据作为测试集, 20% 作为验证集。

2 识别结果分析与讨论

针对基于深度可分离卷积 U-Net 网络采用 4 种损失函数(交叉熵、加权交叉熵、IoU、Dice 损失函数)作为优化目标进行优化, 并分别选取在验证集上表现最好的性能评估结果来比较采用不同优化损失函数作为优化目标时的网络性能。图像分割性能评估量化结果如表 1 所示。

表 1 采用不同损失函数分割性能评估结果

损失函数	准确率	平均 IoU	Dice 系数
交叉熵损失函数	0.971 8	0.843 5	0.839 4
加权交叉熵损失函数	0.975 5	0.855 8	0.860 2
IoU 损失函数	0.976 5	0.859 9	0.860 8
Dice 损失函数	0.976 1	0.865 0	0.869 2

上述分割结果可以看出, 基于本文的正负样本不均匀的核壳结构纳米颗粒的 TEM 图像数据集, 利用 Dice 损失函数和 IoU 损失函数作为优化目标来训练网络时, 网络性能要优于采用交叉熵损失函数和加权交叉熵损失函数, 尤其是在平均 IoU 和 Dice 系数两项评估准则中, 与交叉熵损失函数相比, 分别高出 2% 和 3%。仅针对两种交叉熵损失函数, 加权交叉熵损失函数相对传统交叉熵损失函数, 针对平均 IoU 和 Dice 系数有约 1.5% 的提高。针对 IoU 和 Dice 损失函数作为优化目标时, 网络性能区别不大, 因为两者都是利用集合相似度衡量, 本质含义是一致的。另外, 采用 IoU 和 Dice 损失函数时, 分割结果精度高, 能够满足进一步统计的需求。本文中采用的数据集样本规模不大, 但是透射电子显微镜拍摄的同一批样本 TEM 图像均匀性较好, 因此采用合适的损失函数, 小规模数据集训练出的网络仍能满足实际统计的需求。

图 4 通过分割结果来具体展示性能区别。图 4 展示(a)和(b)两图像采用不同损失函数作为优化目标训练网络时, 网络预测得到的分割结果。从整体上看, 相比于交叉熵损失函数, 采用 IoU 损失函数和 Dice 函数作为优化目标时得到的分割颗粒的准确度(如图 4(a)中 1、3 区域, (b)中 2 区域), 边缘光滑度(如图 4(a)中 2 区域, (b)中 1 区域)都更高, 图像分割结果更精确, 与表 1 中量化评估结果吻合。结果表明利用深度学习网络架构对较小的纳

米颗粒进行识别时, 采用 Dice 损失函数或者 IoU 损失函数来优化网络, 能得到更为精确的分割结果。

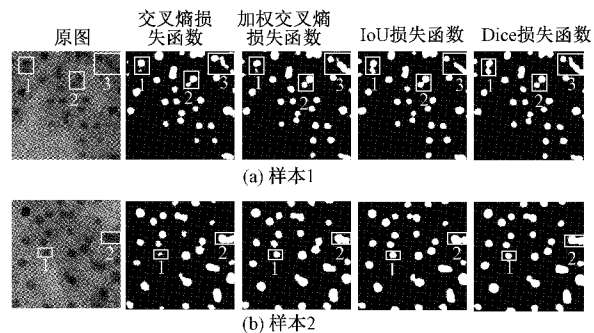


图 4 分割结果定性显示

3 纳米粒径的统计

选用性能最优 Dice 损失函数来训练基于深度可分离卷积 U-Net 网络, 然后利用训练好的网络对现有的 TEM 图片进行预测, 得到图像分割结果。由于边缘颗粒不是完整颗粒, 不计入统计。另外核壳结构纳米颗粒基本都是圆形, 对颗粒有效直径按照式(7)计算:

$$D_i = 2\sqrt{\frac{S_i}{\pi}} \quad (7)$$

其中, S_i 是第 i 个颗粒面积, D_i 是第 i 个颗粒直径。对所有 TEM 图片进行统计, 得到的粒径统计直方图如图 5(a)所示。从图中可知, 粒径基本满足正态分布, 并且主要集中在 1.2~2.5 nm 之间, 样本中的纳米颗粒大小均匀, 实现了 TEM 图像小尺寸颗粒目标的精确分割。

除了粒径统计, 还可以获得更丰富的信息(如图 5(b)所示的颗粒周长统计直方图)来提供给材料领域科研人员, 进一步对纳米材料结构、大小及统计分布进行分析, 将纳米材料结构和催化性能之间进行关联, 进一步揭示纳米材料结构对催化性能的影响, 进而对材料的制备进行指导。

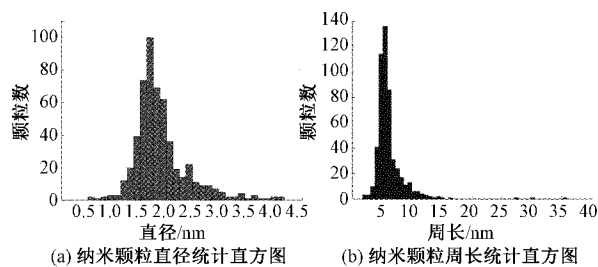


图 5 纳米颗粒参数统计直方图

4 结 论

本文提出一种基于深度可分离卷积 U-Net 网络架构, 针对核壳结构纳米材料的 TEM 图像进行语义分割, 且验证了针对小目标识别, IoU 和 Dice 损失函数作为优化目标

的优越性。最后对识别结果进行统计,得到粒径和颗粒周长等结构信息,为科研人员研究材料结构与催化性能之间的构效关系提供基础。本研究在对纳米材料形状分析上需要进一步加强,比如圆度分析,另外针对粘连颗粒的分割需要进一步研究。

参考文献

- [1] TOBIAS O J, SEARA R. Image segmentation by histogram thresholding using fuzzy sets [J]. IEEE transactions on Image Processing, 2002, 11 (12): 1457-1465.
- [2] DING L, ARDESHIR G. On the Canny edge detector[J]. Pattern Recognition, 2001, 34(3):721-725.
- [3] COMANICIU D, MEER P. Robust analysis of feature spaces: Color image segmentation[C]. Conference on Computer Vision & Pattern Recognition, IEEE, 1997:750-755.
- [4] DE ALBUQUERQUE M P, ESQUEF I A, MELLO A G. Image thresholding using tsallis entropy [J]. Pattern Recognition Letters, 2004, 9(25): 1059-1065.
- [5] 蓝金辉,王迪,申小盼. 卷积神经网络在视觉图像检测的研究进展[J]. 仪器仪表学报, 2020, 41(4):167-182.
- [6] 张培培,王昭,王菲. 基于深度学习的图像目标检测算法研究[J]. 国外电子测量技术, 2020, 39(8):34-39.
- [7] LECUN Y, BOTTOU L, BENGIO Y, et al. Gradient based learning applied to document recognition [J]. Proceedings of the IEEE, 1998, 86(11):2278-2324.
- [8] KRIZHEVSKY A, SUTSKEVER I, HINTON G. ImageNet classification with deep convolutional neural networks [C]. Advances in Neural Information Processing Systems, 2012:1097-1105.
- [9] 章黎明,贾智伟,谢俊力,等. 近四年胶囊内镜图像病灶的深度学习识别研究进展[J]. 电子测量与仪器学报, 2019, 33(8):69-77.
- [10] 吕镜灏. 基于 TEM 纳米颗粒的图像识别[D]. 桂林: 广西师范大学, 2016.
- [11] 魏本征,尹义龙. 基于局部特征约束的 TEM 图像分割算法[J]. 数据采集与处理, 2018, 33(3):16-24.
- [12] RONNEBERGER O, FISCHER P, BROX T. U-Net: Convolutional networks for biomedical image segmentation[C]. International Conference on Medical Image Computing and Computer Assisted Intervention, Munich, Springer, 5-9 October, 2015:234-241.
- [13] CHOLLET F. Xception: Deep learning with depthwise separable convolutions [C]. 2017 IEEE Conference on Computer Vision and Pattern Recognition (CVPR), Honolulu, HI, 2017:1800-1807.
- [14] LONG J, SHELHAMER E, DARRELL T. Fully convolutional networks for semantic segmentation[J]. IEEE Transactions on Pattern Analysis and Machine Intelligence, 2015, 39(4):640-651.
- [15] IOFFE S, SZEGEDY C. Batch normalization: Accelerating deep network training by reducing internal covariate shift[J]. JMLR.org, 2015, <https://arxiv.org/abs/1502.03167>.
- [16] RAHMAN M, WANG Y. Optimizing intersection-over-union in deep neural networks for image segmentation [C]. Proceedings of the International Symposium on Visual Computing, Springer, Cham, Switzerland, 2016:234-244.
- [17] MILLETARI F, NAVAB N, AHMADI S. V-Net: Fully convolutional neural networks for volumetric medical image segmentation [C]. 2016 Fourth International Conference on 3D Vision (3DV), Stanford, CA, USA, 25-28 October, 2016:565-571.

作者简介

刘淑慧,博士,讲师,主要研究方向为 TEM 图像分割与信息提取。

E-mail: liushuhuibpt@126.com

姚丽英,硕士研究生,主要研究方向为基于 TEM 图像的语义分割。

E-mail: 1309434471@qq.com

张仲圆,硕士研究生,主要研究方向为目标检测与实例分割。

E-mail: 3030150853@qq.com

曾洁,教授,硕士生导师,主要研究方向为物联网关键技术研究。

E-mail: zyz@djtu.edu.cn