

# Метод интеллектуального распознавания пространственной структуры наноматериалов на синтетических изображениях электронной микроскопии

Д. С. Поляниченко<sup>1</sup>, А. В. Чернов<sup>2</sup>, О. О. Карташов<sup>3</sup>,  
А. А. Александров<sup>4</sup>, В. В. Бутова<sup>5</sup>, М. А. Бутакова<sup>6</sup>

*Международный исследовательский институт интеллектуальных материалов  
Южного федерального университета*

<sup>1</sup>poliani@sfedu.ru, <sup>2</sup>chernov@sfedu.ru, <sup>3</sup>okartashov@sfedu.ru,  
<sup>4</sup>alea@sfedu.ru, <sup>5</sup>vbutova@sfedu.ru, <sup>6</sup>mbutakova@sfedu.ru

**Аннотация.** Исследование морфологических признаков наночастиц материалов в процессе химического синтеза является одной из приоритетных задач в предметной области исследования. Ключевыми характеристиками материалов на атомарном уровне являются размер и геометрическая форма исследуемой структуры наноматериалов. Одним из наиболее эффективных методов характеристики морфологии наночастиц является метод просвечивающей (трансмиссионной) электронной микроскопии. Основной проблемой применения данного подхода в условиях потокового синтеза наноматериалов является трудоемкость и рутинность обработки изображений электронной микроскопии исследователем. Создание методов по автоматизации определения формы и размеров наночастиц позволит снизить уровень временных и ресурсных затрат на проведение диагностики по результатам химического синтеза наноматериалов, что положительно повлияет на эффективность проведения научных исследований в области синтеза и диагностики новых функциональных наноматериалов. В данной работе предлагается ускоренный метод генерации синтетических изображений трансмиссионной электронной микроскопии, как основа для создания программного инструментария ускорения процесса диагностики и характеристики металлорганических каркасов в процессе химического синтеза на основе применения технологий глубокого обучения. Рассмотрен подход автоматической генерации пространственной структуры синтезируемых материалов на наноразмере, позволяющий смоделировать широкий спектр возможных исходов при проведении лабораторного синтеза. Предложены процедуры генерации наборов синтетических изображений трансмиссионной электронной микроскопии с поддержкой автоматической сегментации и выделения областей интересов для приложений машинного и глубокого обучения. Проведено тестирование и оценка полученных наборов данных для решения обозначенной задачи с использованием алгоритма глубокого обучения обнаружения объектов Yolo v5.

**Ключевые слова:** синтетические наборы данных; изображения трансмиссионной электронной микроскопии; алгоритмы обнаружения объектов; глубокое обучение

## I. ВВЕДЕНИЕ

Наноструктуры на сегодняшний день приобретают все больший интерес для широкого круга

Исследование выполнено по государственному заданию № 0852-2020-0019 в Южном федеральном университете.

промышленных применений. Синтез и диагностика новых функциональных наноматериалов порождает новые тенденции в развитии производственно-технологических процессов. Использование наноразмерных структур в энергетических и химических промышленности, медицине и фармакологии позволяют решать ряд общественно-значимых, технологических и экономических проблем на мировом уровне [1–3]. Одним из современных направлений исследований в области изучения наноразмерных структур, вызывающим повышенный интерес среди научных коллективов является синтез металл-органических каркасных структур (МОК) [4]. Благодаря своей уникальной структуре и функциональным химическим свойствам эти наночастицы востребованы в электрохимическом хранении энергии, катализе, изготовлении сенсорных устройств восприятия и хранения газов, создании фильтров очистных сооружений и организации адресной доставки лекарств [4–7]. Существует ряд подходов к синтезу металлорганических каркасов, среди которых выделяются гидротермальный, сольвотермальный, электро- и механохимический, диффузионный, микроволновый и ультразвуковой [4]. Для определения результатов синтеза и характеристик наночастиц исследователи применяют инструментальные методы характеристики наноразмерных структур, полученных в ходе эксперимента. Среди большого многообразия которых, для решения задачи определения формы и размера пространственной структуры функциональных наноматериалов доказал свою высокую точность и эффективность метод трансмиссионной электронной микроскопии (ТЭМ) [8–10].

Одним из наиболее информативных признаков получаемых при ручной обработке ТЭМ-изображений является подтверждение геометрической формы частицы для установления ее типа после каждого синтеза [11]. Зачастую это рутинный, трудоемкий и времязатратный процесс, который значительно снижает эффективность и результативность проводимого экспериментального исследования, особенно в условиях потокового синтеза, где одной из ключевых задач является своевременная оценка получаемых свойств новых функциональных наноматериалов. Проблема выражена в необходимости автоматизировать процесс подтверждения требуемой

формы локальной атомной структуры наноразмерного вещества с минимальными ресурсными затратами. Для решения проблемы определения пространственной формы и размера наночастиц в работе [12] авторами предлагается использование модели нейронной сети Cascade Mask-RCNN, достигающей максимальной точности в 0,84 и требующей около пары минут на обработку полученного ТЭМ изображения. Существуют алгоритмы автоматической характеристики синтезируемых частиц на основе параметрической идентификации геометрических элементов растрового изображения с использованием модифицированного преобразования Хафа [13, 14]. Более общий и глубокий подход предложен исследователями в работе [15], где предлагается использовать модель глубокого обучения U-net не только для определения морфологических характеристик наноразмерных частиц на основе ТЭМ-изображений, но и отслеживать динамику их изменения. Подход изложенный в [16] предлагает модифицировать алгоритм автоматизированного анализа данных изображений TEM 1mNP путем применения неконтролируемого машинного обучения для обобщения морфологических распределений при химическом синтезе. В [17] авторами сообщается о высокой точности при использовании генетического алгоритма для анализа изображений просвечивающей электронной микроскопии. Исходя из этого, можно сделать предположение о высокой эффективности алгоритмов машинного и глубокого обучения, а также компьютерного зрения при решении задач по автоматизации определения морфологических характеристик наночастиц в процессе синтеза. Однако для практической реализации такого подхода требуется значительный объем размеченных визуальных данных, на которых алгоритм искусственного интеллекта сможет выявить скрытые закономерности для обобщения морфологического распределения в процессе химического синтеза на изображениях электронной микроскопии. В процессе решения задачи подтверждения пространственной формы МОК было обнаружено, что на сегодняшний день не существует доступных депонированных наборов визуальных данных трансмиссионной электронной микроскопии относительно металлоорганических каркасов UiO-66. Получение достаточного количества подобных высококачественных графических данных и их последующая разметка для приложений машинного и глубокого обучения сопряжена с колоссальными ресурсными и временными затратами исследователей в области химического синтеза. В рамках решения обозначенной проблемы были рассмотрены возможные методы генерации синтетических наборов данных ТЭМ-изображений, содержащих наноразмерные структуры МОК UiO-66. Далее в работе будут рассмотрены подходы к генерации наборов данных изображений и предложен ускоренный метод создания синтетических визуальных наборов данных электронной микроскопии для решения задачи автоматизации определения пространственной формы синтезируемых наночастиц. Проведен обзор алгоритмов машинного и глубокого обучения обнаружения объектов на изображении. Выполнено обучение модели нейронной сети Yolo v5 с использованием полученных наборов графических данных ТЭМ. Проведена оценка результатов работы алгоритма на реальных визуальных данных химического

синтеза металл-органических каркасных структур. Обозначены дальнейшие направления развития исследования и практическое применение полученных результатов в других смежных предметных областях.

## II. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Методы создание синтетических данных для приложений машинного и глубокого обучений доказали свою полезность и эффективность при решении множества практических и научных задач. Так в [18] рассмотрены семь ключевых вариантов использования смоделированных данных с позиции рассмотрения методов генерации синтетических данных, как критической технологии способной расширить возможности искусственного интеллекта. А работа [19], посвящена рассмотрению вопросов связанных с включением синтетических данных в интеллектуальный анализ областей здоровья и благополучия человека. Можно условно выделить две категории методов создания синтетических данных для обнаружения объектов, среди которых использование модулей систем автоматизированного проектирования и компьютерного моделирования, а также применение подходов композиции изображений к уже имеющимся данным. Исследование [20] показывает, что при отсутствии необходимого минимума по количеству исходных данных первый подход в реальных задачах гарантирует более высокую точность и улучшает производительность используемой модели машинного обучения. Среди существующих гибридных подходов к композиции изображений при создании синтетических данных можно выделить результаты, полученные в [21]. Где авторы предлагают моделировать данные для покадровой флуоресцентной микроскопии в медицинских целях, разделяя целевое изображение на три слоя, один из которых будет произвольно генерироваться, как фантом объекта обнаружения, а остальные слои будут носителями затемнения и шума. В работе [22] предлагается использование методов фотограмметрии к объектам реального мира и приведены основные положительные результаты оценки модели InceptionV3, где единственным источником обучающей выборки были синтетические данные. Одним из эффективных методов аугментации и генерации синтетических данных изображений является применение глубоких сверточных генеративно-сопоставительных сетей (DCGAN). Так в [23] исследователи успешно использовали модель DCGAN для решения задачи классификации лейкоцитов. В целом при недостаточном объеме реальных данных изображений в обучающей выборке можно рассмотреть возможность нейросетевой аугментации в рамках решаемой задачи [24].

Учитывая недостаточный объем выборки реальных данных ТЭМ-изображений МОК UiO-66 (порядка 50), характер визуализации и требуемую задачу, классические методы аугментации в целом не могут обеспечить требуемую достоверность синтетического набора. Так аффинные и проективные методы геометрической аугментации могут изначально исказить необходимую пространственную структуру МОК, а добавление шумов, размытия, замена фона или цвета в целом не соответствует морфологическому распределению исходных образцов данных. Применение различных генеративно-сопоставительных сетей на

имеющихся наборах ТЭМ-изображений не смогло обеспечить возможные комбинации коэффициентов перекрытия, правильно распределять частицы в растворе и обеспечивать широкую вариативность пространственной формы МОК в пределах идеальной геометрии наноструктуры. Кроме того, необходимо учитывать, что при организации данных процедур генерации сложно реализовать процедуру автоматизированной сегментации данных или выделения областей интересов на изображениях. Исходя из этого, для создания синтетических наборов визуальных данных был выбран подход использования модулей систем автоматизированного проектирования, компьютерного моделирования и мультипарадигмального языка программирования Python.

Автоматизация генерации синтетических ТЭМ изображений осуществлялась с применением программного обеспечения для создания трехмерной графики Blender, его интерфейса программирования приложений Blender Python API и языка программирования Python. На первом этапе были заданы вертексы и объединены плоскостями видимого полимеша для организации эталонных трехмерных геометрических форм наноструктур получаемых в результате синтеза МОК и учета их видимых поверхностей. Далее созданы процедуры произвольной деформации объемных тел с учетом ограничений относительно возможных результатов реального химического синтеза. Определен алгоритм пространственного размещения трехмерных наноструктур их вращения и задания объема на основе реального морфологического распределения наночастиц в растворе для просвечивающей электронной микроскопии. Реализована функция множественной генерации пространственных геометрических форм. Разработан алгоритм первичной настройки сцены в трехмерном пространстве с учетом возможных коэффициента перекрытия и локальной группировки наночастиц. Отображение перекрытия реализовано путем создания и назначения материалов с установкой, смешивающего альфа-канала с использованием Гауссова размытия. Для дальнейшего удобства выделения целевой формы исследуемых наноструктур на получаемых в результате компьютерной визуализации изображениях, была использована цветовая индикация интересующей геометрии, в нашем случае искомая пространственная форма – это октаэдр.

Большинство существующих моделей глубокого обучения для обнаружения объектов используют в качестве меток области интересов (ROI). Для автоматизации выделения областей интереса был создан скрипт для утилиты разметки данных LabelImg, использующий цветовую индикацию эталонной геометрии и генерирующий файл меток для каждого объекта, составляющего интерес. Для дальнейшего использования обучающий выборки данных был применен фильтр, преобразовывающий цветовую палитру изображения к градиациям серого.

Для решения задачи обнаружения объектов существуют несколько моделей нейронных сетей. Условно их можно разделить по количеству слоев обработки ROI на «одноуровневые» и «двухуровневые». Главными недостатками двухуровневых архитектур,

таких как Faster RCNN, можно назвать медленную скорость работы и, что важно, акцент внимания именно на ROI. Обычно, такие сети не рассматривают изображение полностью, а используют в работе только области интересов. Одноуровневые нейронные сети лишены таких недостатков благодаря более простой архитектуре и использования принципа карт признаков в своей основе. Наиболее удачным выбором для нашей задачи оказалась Yolo v5, так как карты признаков в ней реализованы в виде мозаичного увеличения данных (Mosaic data augmentation), такой алгоритм позволяет лучше работать с маленькими объектами на изображениях [25].

### III. РЕЗУЛЬТАТЫ

В данной работе предлагается ускоренный метод генерации размеченных данных ТЭМ-изображений для решения задачи определения пространственной формы наноструктуры МОК по результатам химического синтеза в реальном времени. Основа метода заключается в воссоздании пространственной структуры синтезируемых в водном растворе наночастиц с сохранением их морфологических характеристик. В качестве среды для компьютерного моделирования наноструктур был выбран редактор трехмерной графики, настройка которого реализована с помощью высокоуровневого языка программирования общего назначения Python. Предусмотрены режимы генерации синтетических изображений различного разрешения и плотности пикселей. Для решения обозначенной выше задачи интеллектуального анализа формы синтезируемых функциональных наноматериалов нами был создан набор синтетических данных ТЭМ-изображений с разрешением каждой в 224 на 224 пикселя. На генерацию одного отдельного сегментированного графического файла с использованием вычислительной мощности центрального процессора (Intel® Core™ i5-11400F) требовалось в среднем 1.7 секунды. В публичном репозитории ([https://github.com/codeConcil/mof\\_finder](https://github.com/codeConcil/mof_finder) Дата обращения 08.04.2022г.) приведены примеры сгенерированных наборов сегментированных данных, наборов с разметкой областей интересов, а также неразмеченных данных ТЭМ-изображений. Кроме того, в данном каталоге GitHub, размещены программные реализации проект по генерации синтетических данных с использованием Blender, скрипт для автоматизированной разметки ТЭМ-изображений с помощью утилиты LabelImg, файл конфигурации и веса обученной на наших примерах модели Yolo v5.

За основу была взята стандартная предобученная модель Yolo v5, для переобучения которой был взят набор из 1000 синтетических ТЭМ-изображений с метками областей интереса, что в целом меньше рекомендованного объема, в рамках решения задачи обнаружения и подтверждения пространственной формы МОК – октаэдра. Обучение производилось на графическом дискретном адаптере Nvidia Quadro RTX 8000 (48 Гб), в конфигурации рабочей станции с процессором Intel® Xeon® E5-4655 v3, 128 Гб оперативной памяти и твердотельным накопителем с высокими показателями скоростей чтения и записи данных и заняло порядка 1,5 минут.

На рис. 1 приведена коррелограмма меток областей интересов, которая является группой двумерных гистограмм показывающих попарные проекции осей данных по принципу «каждый с каждым».

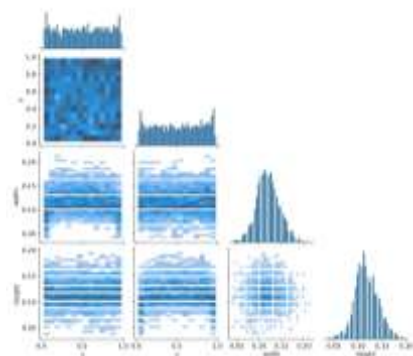


Рис. 1. Коррелограмма меток областей интересов

Для описания полученного набора синтетических визуальных данных на рис. 2 представлены графики плотности распределения параметров разметки.

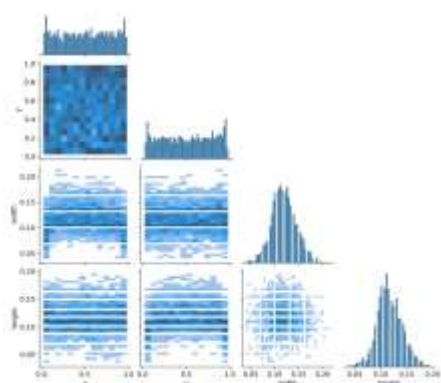


Рис. 2. Плотности распределения параметров меток

Где (слева направо и сверху вниз) на первом изображено количество меток в каждом классе. В нашем случае только один класс – октаэдр. На следующем приведено графическое представление размерности областей интереса в обучающей выборке данных. Далее приведены плотность распределения пространственного положения меток и плотность распределения их размеров.

Результаты обучения и валидации модели приведены на рис. 3, где (слева направо и сверху вниз) приведены графики: 1. Среднеквадратичная ошибка при обучении модели; 2. Перекрестная кросс энтропия при обучении модели; 3. Энтропия при обучении модели; 4. Точность при обучении модели; 5. Полнота при обучении модели; 6. Среднеквадратичная ошибка при валидации модели; 7. Перекрестная кросс энтропия при валидации модели; 8. Энтропия при валидации модели; 9 и 10 Средние взвешенные точности для различных пороговых значений меры сходства.

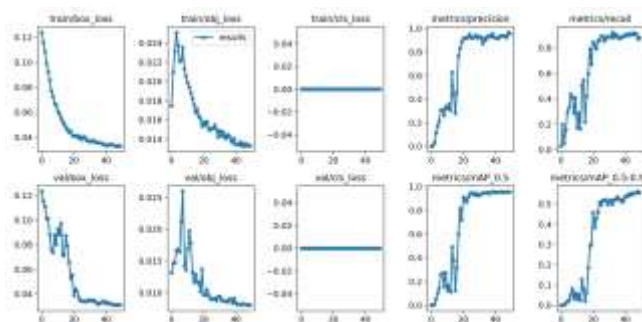


Рис. 3. Метрики обучения и валидации модели на синтетических наборах данных ТЭМ-изображений

В результате тестирования обученной модели Yolo v5 она корректно определяла и подтверждала пространственную форму МОК в 95 процентах случаев. Пример обнаружения целевого объекта на синтетических (слева) и реальных (справа) данных ТЭМ-изображений химического синтеза МОК приведены на рис. 4.

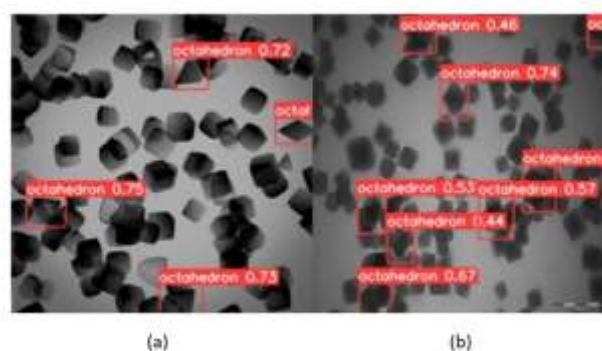


Рис. 4. Результат работы обнаружения целевой пространственной формы наноструктуры обученной моделью Yolo v5. (a) – на основе синтетического ТЭМ-изображения; (b) – на основе данных, полученных в ходе реального химического синтеза МОК

#### IV. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Среди основных результатов исследования можно выделить создание ускоренного метода генерации синтетических наборов данных ТЭМ-изображений для приложений машинного обучения и компьютерного зрения в разрезе решения задач интеллектуального анализа пространственной формы наноструктур, получаемых в процессе синтеза МОК. В ходе исследования были сгенерированы, размечены и депонированы наборы синтетических визуальных данных, обучена модель Yolo v5 в рамках решения задачи автоматизации определения наноструктур МОК, получаемых в результате потокового химического синтеза. Данный подход снизит временную и рутинную нагрузку на исследователя путем замены ручного определения формы синтезируемых наночастиц на автоматическое обнаружение обученным алгоритмом искусственного интеллекта. Подобные программные средства могут существенно расширить функциональные возможности существующих просвечивающих электронных микроскопов для экспериментальных исследований. Следующим шагом в решении задачи автоматизации проведения научных исследований относительно этой работы станет выделение дополнительных морфологических признаков наноструктур на ТЭМ-изображениях. Подход к генерации синтетических данных и их разметке,

предложенный в работе является гибким и масштабируемым, что позволит в будущем применить получаемые результаты в смежных предметных областях и значительно расширить возможности применения алгоритмов искусственного интеллекта в области исследования металл-органических каркасных структур.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Luther W. Industrial Application of Nanomaterials - Chances and Risks. 120. ISSN 1436-5928
- [2] Stark W.J., Stoessel P.R., Wohlleben W., Hafner A. Industrial Applications of Nanoparticles. Chem. Soc. Rev. 2015, 44, 5793–5805, doi:10.1039/C4CS00362D.
- [3] Thomas S. Industrial Applications of Nanomaterials, 1st edition., Elsevier: Cambridge, CA, 2019, ISBN 978-0-12-815749-7.
- [4] Yap M.H., Fow K.L., Chen G.Z. Synthesis and Applications of MOF-Derived Porous Nanostructures. Green Energy & Environment 2017, 2, 218–245, doi:10.1016/j.gee.2017.05.003.
- [5] Mallakpour S., Nikkhoo E., Hussain C.M. Application of MOF Materials as Drug Delivery Systems for Cancer Therapy and Dermal Treatment. Coordination Chemistry Reviews 2022, 451, 214262, doi:10.1016/j.ccr.2021.214262.
- [6] Chen L., Zhang X., Cheng X., Xie Z., Kuang Q., Zheng L. The Function of Metal–Organic Frameworks in the Application of MOF-Based Composites. Nanoscale Adv. 2020, 2, 2628–2647, doi:10.1039/D0NA00184H.
- [7] Freund R., Zaremba O., Arnauts G., Ameloot R., Skorupskii G., Dincă, M., Bavykina, A., Gascon, J., Ejsmont, A., Goscianska, J., et al. The Current Status of MOF and COF Applications. Angewandte Chemie Intl Edit 2021, 60, 23975–24001, doi:10.1002/anie.202106259.
- [8] Mourdikoudis S., Pallares R.M., Thanh N.T.K. Characterization Techniques for Nanoparticles: Comparison and Complementarity upon Studying Nanoparticle Properties. Nanoscale 2018, 10, 12871–12934, doi:10.1039/C8NR02278J.
- [9] Mayence A. Design and Characterization of Nanoparticles and Their Assemblies Transmission Electron Microscopy Investigations from Atomic to Mesoscopic Length Scales, Department of Materials and Environmental Chemistry (MMK), Stockholm University: Stockholm, 2016.
- [10] Smith D.J. Chapter 1. Characterization of Nanomaterials Using Transmission Electron Microscopy. In Nanoscience & Nanotechnology Series, Kirkland, A.I., Haigh, S.J., Eds., Royal Society of Chemistry: Cambridge, 2015, pp. 1–29 ISBN 978-1-84973-805-7.
- [11] Mori T., Hegmann T. Determining the Composition of Gold Nanoparticles: A Compilation of Shapes, Sizes, and Calculations Using Geometric Considerations. J Nanopart Res 2016, 18, 295, doi:10.1007/s11051-016-3587-7.
- [12] Nartova A.V., Mashukov M.Yu., Astakhov R.R., Kudinov V.Yu., Matveev A.V., Okunev A.G. Particle Recognition on Transmission Electron Microscopy Images Using Computer Vision and Deep Learning for Catalytic Applications. Catalysts 2022, 12, 135, doi:10.3390/catal12020135.
- [13] Mirzaei M., Rafsanjani H.K. An Automatic Algorithm for Determination of the Nanoparticles from TEM Images Using Circular Hough Transform. Micron 2017, 96, 86–95, doi:10.1016/j.micron.2017.02.008.
- [14] Meng Y., Zhang Z., Yin H., Ma T. Automatic Detection of Particle Size Distribution by Image Analysis Based on Local Adaptive Canny Edge Detection and Modified Circular Hough Transform. Micron 2018, 106, 34–41, doi:10.1016/j.micron.2017.12.002.
- [15] Faraz K., Grenier T., Ducottet C., Epicier T. Deep Learning Detection of Nanoparticles and Multiple Object Tracking of Their Dynamic Evolution during in Situ ETEM Studies. Sci Rep 2022, 12, 2484, doi:10.1038/s41598-022-06308-2.
- [16] Wang X., Li J., Ha H.D., Dahl J.C., Alivisatos A.P. AutoDetect-MNP: An Unsupervised Machine Learning Algorithm for Automated Analysis of Transmission Electron Microscope Images of Metal Nanoparticles. 26.
- [17] Lee B., Yoon S., Lee J.W., Kim Y., Chang J., Yun J., Ro J.C., Lee J.-S., Lee J.H. Statistical Characterization of the Morphologies of Nanoparticles through Machine Learning Based Electron Microscopy Image Analysis. ACS Nano 2020, 14, 17125–17133, doi:10.1021/acsnano.0c06809.
- [18] James S., Harbron C., Branson J., Sundler M. Synthetic Data Use: Exploring Use Cases to Optimise Data Utility. Discov Artif Intell 2021, 1, 15, doi:10.1007/s44163-021-00016-y.
- [19] Hernandez M., Epelde G., Beristain A., Álvarez R., Molina C., Larrea X., Alberdi A., Timoleon M., Bamidis P., Konstantinidis E. Incorporation of Synthetic Data Generation Techniques within a Controlled Data Processing Workflow in the Health and Wellbeing Domain. Electronics 2022, 11, 812, doi:10.3390/electronics11050812.
- [20] Arcidiacono C. An Empirical Study on Synthetic Image Generation Techniques for Object Detectors. 91.
- [21] Svoboda D., Ulman V. Generation of Synthetic Image Datasets for Time-Lapse Fluorescence Microscopy. In Proceedings of the Image Analysis and Recognition, Campilho, A., Kamel, M., Eds., Springer Berlin Heidelberg: Berlin, Heidelberg, 2012, pp. 473–482.
- [22] Wong M.Z., Kunii K., Baylis M., Ong W.H., Kroupa P., Koller S. Synthetic Dataset Generation for Object-to-Model Deep Learning in Industrial Applications. arXiv:1909.10976 [cs] 2019.
- [23] Hartanto C.A., Kurniawan S., Arianto D., Arymurthy A.M. DCGAN-Generated Synthetic Images Effect on White Blood Cell Classification. IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng. 2021, 1077, 012033, doi:10.1088/1757-899X/1077/1/012033.
- [24] Khalesi M., Kishore S., MacCabe S. Synthetic Data Augmentation to Aid Small Training Datasets. 6.
- [25] Mohamed E., Shaker A., El-Sallab A., Hadhoud M. INSTA-YOLO: Real-Time Instance Segmentation. arXiv:2102.06777 [cs] 2021.