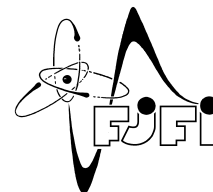


ČESKÉ VYSOKÉ UČENÍ TECHNICKÉ V PRAZE
Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská



Rekonstrukce práškových difraktogramů ve 4D STEM mikroskopii pomocí metod hlubokého učení

Reconstruction of powder diffractograms in 4D STEM microscopy using deep learning

Diplomová práce

Autor: **Bc. David Rendl**
Vedoucí práce: **doc. Ing. Filip Šroubek, Ph.D. DSc.**
Akademický rok: **2024/2025**

I. OSOBNÍ A STUDIJNÍ ÚDAJE

Příjmení: **Rendl**

Jméno: **David**

Osobní číslo: **494757**

Fakulta/ústav: **Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská**

Zadávající katedra/ústav: **Katedra matematiky**

Studijní program: **Aplikované matematicko-stochastické metody**

II. ÚDAJE K DIPLOMOVÉ PRÁCI

Název diplomové práce:

Rekonstrukce práškových difraktogramů ve 4D STEM mikroskopii pomocí metod hlubokého učení

Název diplomové práce anglicky:

Reconstruction of powder diffractograms in 4D STEM microscopy using deep learning

Pokyny pro vypracování:

- Nastudujte metodu 4D-STEM/PNBD vyvíjenou na ÚMCH.
 - Seznamte se s metodami segmentace obrazu a navrhnete použití některé z klasických metod a metod strojového učení pro analýzu difraktogramů.
 - Navrhnete postup generování syntetických difraktogramů. Využijte znalostí o charakteru skutečných dat a použijte syntetická data pro natrénování segmentační hluboké sítě.
 - Ve spolupráci s ÚMCH a ÚPT prozkoumejte vliv pozadí snímku a možnosti jak pozadí odstranit. Porovnejte výsledné práškové difraktogramy získané pomocí dekonvoluce a segmentace bez odstranění pozadí a po odstranění pozadí.
 - Otestujte všechny navržené metody na reálných difraktogramech pořízených na ÚPT. Porovnejte výsledné práškové difraktogramy získané dekonvolucí a segmentací.
 - Implementujte všechny navržené metody do existujících volně šiřitelných knihoven IDIFF a STEMDIFF.
- školicel specialista: Doc. RNDr. Miroslav Šlouf, Ph.D., ÚMCH AV ČR.

Seznam doporučené literatury:

Torralba, A.; Isola, I.; Freeman, W.T.; Foundations of Computer Vision (Adaptive Computation and Machine Learning series), MITPress, 2024.

VALVODA, Václav, Milena POLCAROVÁ a Pavel LUKÁČ. Základy strukturní analýzy. 1. vyd. Praha: Univerzita Karlova, 1992, 489 s. ISBN 807066648X.

Giacovazzo, Carmelo, and others, Fundamentals of Crystallography, 3rd edn, International Union of Crystallography Texts on Crystallography (Oxford, 2011; online edn, Oxford Academic, 17 Dec. 2013), <https://doi.org/10.1093/acprof:oso/9780199573653.001.0001>, accessed 5 Aug. 2024.

Šlouf, M.; Skoupy, R.; Pavlova, E.; Krzyzanek, V. Powder Nano-Beam Diffraction in Scanning Electron Microscope: Fast and Simple Method for Analysis of Nanoparticle Crystal Structure. Nanomaterials 2021, 11, 962. <https://doi.org/10.3390/nano11040962>

Šlouf, M.; Skoupy, R.; Pavlova, E.; Krzyzanek, V. High Resolution Powder Electron Diffraction in Scanning Electron Microscopy. Materials 2021, 14, 7550. <https://doi.org/10.3390/ma14247550>

Jméno a pracoviště vedoucí(ho) diplomové práce:

doc. Ing. Filip Šroubek, Ph.D. ÚTIA AV ČR, v. v. i.

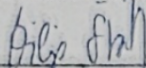
Jméno a pracoviště druhé(ho) vedoucí(ho) nebo konzultanta(ky) diplomové práce:

doc. RNDr. Miroslav Šlouf, Ph.D. Ústav makromolekulární chemie AV ČR, v.v.i.

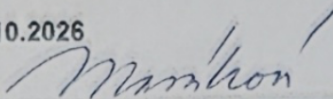
Datum zadání diplomové práce: 31.10.2024

Termín odevzdání diplomové práce: 09.05.2025

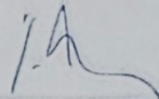
Platnost zadání diplomové práce: 31.10.2026



doc. Ing. Filip Šroubek, Ph.D.
podpis vedoucí(ho) práce



prof. Ing. Zuzana Masáková, Ph.D.
podpis vedoucí(ho) ústavu/katedry



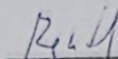
doc. Ing. Václav Čuba, Ph.D.
podpis děkana(ky)

III. PŘEVZETÍ ZADÁNÍ

Diplomant bere na vědomí, že je povinen vypracovat diplomovou práci samostatně, bez cizí pomoci, s výjimkou poskytnutých konzultací. Seznam použité literatury, jiných pramenů a jmen konzultantů je třeba uvést v diplomové práci.

5.11.2024

Datum převzetí zadání



Podpis studenta

Poděkování:

Chtěl bych zde poděkovat především svému školiteli doc. Ing. Filipu Šroubkovi, Ph.D. DSc. za pečlivost, ochotu, vstřícnost a odborné i lidské zázemí při vedení mé diplomové práce. Dále bych rád poděkoval doc. RNDr. Miroslavovi Šloufovi Ph.D. za neocenitelné konzultace, poskytnutí veškerých dat a pečlivé vedení v oblasti krystalografie. Nakonec bych rád poděkoval Bc. Janu Krátkému a Ing. Jiřímu Nábělkovi za užitečnou a konstruktivní zpětnou vazbu.

Čestné prohlášení:

Prohlašuji, že jsem tuto práci vypracoval samostatně a uvedl jsem všechnu použitou literaturu.

V Praze dne 9. května 2025

David Rendl

Název práce:

Rekonstrukce práškových difraktogramů ve 4D STEM mikroskopii pomocí metod hlubokého učení

Autor: Bc. David Rendl

Obor: Aplikované matematicko-stochastické metody

Druh práce: Diplomová práce

Vedoucí práce: doc. Ing. Filip Šroubek, Ph.D. DSc., Ústav teorie informace a automatizace

Abstrakt: Tato diplomová práce se zabývá rekonstrukcí 2D práškových difraktogramů získaných 4D-STEM in SEM mikroskopií. Pomocí metod zpracování obrazu se pokusíme získat lepší výsledky pro analýzu krystalických vzorků novou metodou 4D-STEM/PNBD, vyvíjenou ve spolupráci s UMCH a UTIA. Nejprve v krátkosti představíme problematiku 4D-STEM/PNBD, poté shrneme dosud používané metody a navrhneme dva nové klasické přístupy k rekonstrukci difraktogramů. Dále představíme postupy pro generování syntetických difraktogramů, jeden využívající odhad charakteru dat a jeden využívající fyzikální simulaci procesu difrakce. Na takto vygenerovaných snímcích natrénujeme segmentační neuronovou síť pro použití při rekonstrukcích. Nakonec všechny navržené metody otestujeme na třech krystalických vzorcích.

Klíčová slova: Elektronová difrakce, 4D-STEM, Dekonvoluce, Richardson-Lucy, Regularizace, PSF, Segmentace, Model Gaussovske směsi, LoG detektor, U-Net

Title:

Reconstruction of powder diffractograms in 4D STEM microscopy using deep learning

Author: Bc. David Rendl

Abstract: This master thesis deals with the reconstruction of 2D powder diffractograms obtained by 4D-STEM in SEM microscopy. Using image processing methods, we will try to obtain better results for the analysis of crystalline samples by a new 4D-STEM/PNBD method developed in collaboration with UMCH and UTIA. We will first briefly introduce the 4D-STEM/PNBD problem, then summarize the methods used so far and propose two new classical approaches for diffractogram reconstruction. Next, we will present procedures for generating synthetic diffractograms, one using data character estimation and one using physical simulation of the diffraction process. We will train a segmentation neural network on the images thus generated for use in reconstructions. Finally, we test all the proposed methods on three crystal samples.

Key words: Electron diffraction, 4D-STEM, Deconvolution, Richardson-Lucy, Regularization, PSF, Segmentation, Gaussian Mixture Model, LoG detector, U-Net

Obsah

Úvod	7
1 Představení 4D-STEM/PNBD	9
2 Dosavadní přístup	13
2.1 Vznik obrazu	13
2.2 Dekonvoluce difraktogramů	15
2.3 Detekce difrakčních obrazců	20
3 Detekce pomocí metod zpracování obrazu	22
3.1 Model Gaussovske směsi po řádcích	27
3.2 Prahování řádků v polárních souřadnicích	37
3.3 Blob detektory a ošetření jasu pozadí	45
4 Generování syntetických dat	54
4.1 Odhadnutí charakteru dat	54
4.2 Fyzikální simulace difrakce	57
5 Detekce pomocí neuronových sítí	63
6 Experimentální výsledky	70
6.1 Vzorek Fe_3O_4	70
6.2 Vzorek TbF_3	74
6.3 Vzorek LaF_3	76
7 Závěr	79

Úvod

Elektronová mikroskopie se stala naprosto zásadní analytickou metodou v mnoha oblastech, jako je například medicína nebo materiálový výzkum - konkrétně v našem případě krystalografie. V této práci se budeme zabývat poměrně novou metodou 4D-STEM Powder Nano Beam Diffraction (4D-STEM/PNBD), vyvíjenou ve spolupráci s UMCH, UTIA a UPT. Cílem práce bude shrnout a navázat na dosavadní zjištění v oblasti získávání a analýzy práškových difraktogramů metodou 4D-STEM in SEM. Metoda 4D-STEM in SEM využívá skenovací elektronový mikroskop vybavený pixelovaným detektorem. Elektronový paprsek prochází krystalickým vzorkem, dochází k difrakci a na detektoru zachytíme difrakční obrazec. Tyto obrazce je obvykle velmi náročné analyzovat, krystaly ve vzorku jsou náhodně orientované, a tudíž i difraktogramy jsou náhodně orientované. Metody pro analýzu těchto difraktogramů existují, ale typicky jsou velmi složité a nevhodné pro běžného uživatele. Využíváme jednodušší přístup, kdy nasbíráme velké množství difraktogramů z různých oblastí krystalického vzorku. Tyto jednotlivé difraktogramy sečteme a získáme tak práškový difraktogram, jehož následná analýza je již poměrně jednoduchá. Další zásadní výhodou naší metody je cena. Práškové difraktogramy se obvykle získávají transmisním elektronovým mikroskopem, který je mnohem dražší a méně rozšířený než skenovací elektronové mikroskopy, jež lze dnes nalézt již i na některých středních školách.

Problém, se kterým se zde potýkáme, spočívá v tom, že skenovací elektronové mikroskopy mají typicky nízké energie, snímky jsou silně zašuměné, rozmazané a mají neuniformní pozadí. Všechny tyto deformace nám výrazně komplikují jakoukoliv analýzu, a proto se je pokusíme různými metodami odstranit. V minulosti jsme zkoumali využití dekonvoluce, a to jak v regularizovaných, tak i neregularizovaných, variantách. Obvyčejná dekonvoluce se osvědčila pro některé typy vzorků, ale přináší mnohé komplikace, v podobě odhadování rozptylové funkce a výpočetní náročnosti. Regularizace oproti tomu nepřinesla žádné znatelné zlepšení rekonstrukcí. Tyto problematické aspekty dekonvoluce zkusíme obejít využitím segmentačních metod, při nichž najdeme celý difrakční obrazec a zpětně zrekonstruujeme práškový difraktogram bez výše zmíněných defektů. Zaměříme se na klasické metody i na metody hlubokého učení.

Práce je rozdělená do 5 kapitol. V první kapitole představíme detailněji samotnou metodu 4D-STEM/PNBD a motivaci k aplikaci pokročilých metod zpracování obrazu. V další kapitole shrneme dosavadní přístup a navrhneme nové metody segmentace. Konkrétně budeme diskutovat možnost segmentace difraktogramů pomocí prahování snímků po řádcích. Toto je umožněno prostým převedením difraktogramu do polárních souřadnic. Další navržená klasická metoda je založena na blob detektoru Laplacian of Gaussian (LoG). K jeho použití navrhneme novou metodu pro odhad a odstranění jasu pozadí. Práce směřuje k otestování metod hlubokého učení pro segmentaci difraktogramů. Pro tento účel je zapotřebí získat velké množství trénovacích snímků. Protože manuální anotace difraktogramů je v takovém množství nereálná, zabýváme se v kapitole 4 možností generovat syntetické difraktogramy, a to hned dvěma způsoby. Odhadnutím charakteru snímků a fyzikální simulací difrakce. Na takto vygenerovaných snímcích poté v

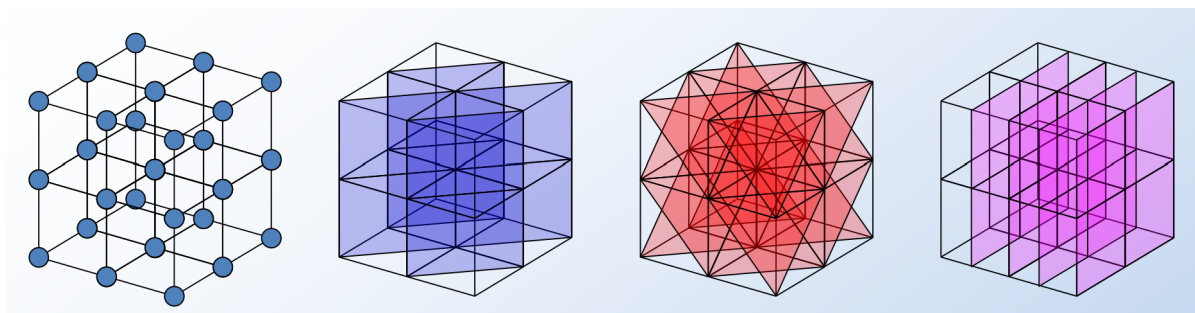
kapitole 5 natrénujeme segmentační neuronovou síť typu U-Net. Na závěr otestujeme všechny metody na třech krystalických vzorcích, Fe_3O_4 , TbF_3 a LaF_3 .

Jedním z cílových výstupů této práce bylo rozšíření knihovny STEMDIFF, vyvinuté ve spolupráci UMCH a UPT o nové metody zpracování difraktogramů. Doplnili jsme nové metody do této knihovny při zachování jednoduchosti použití. Veškeré zpracování dat probíhalo na grafické kartě RTX 4060Ti a procesoru Ryzen 5600.

Kapitola 1

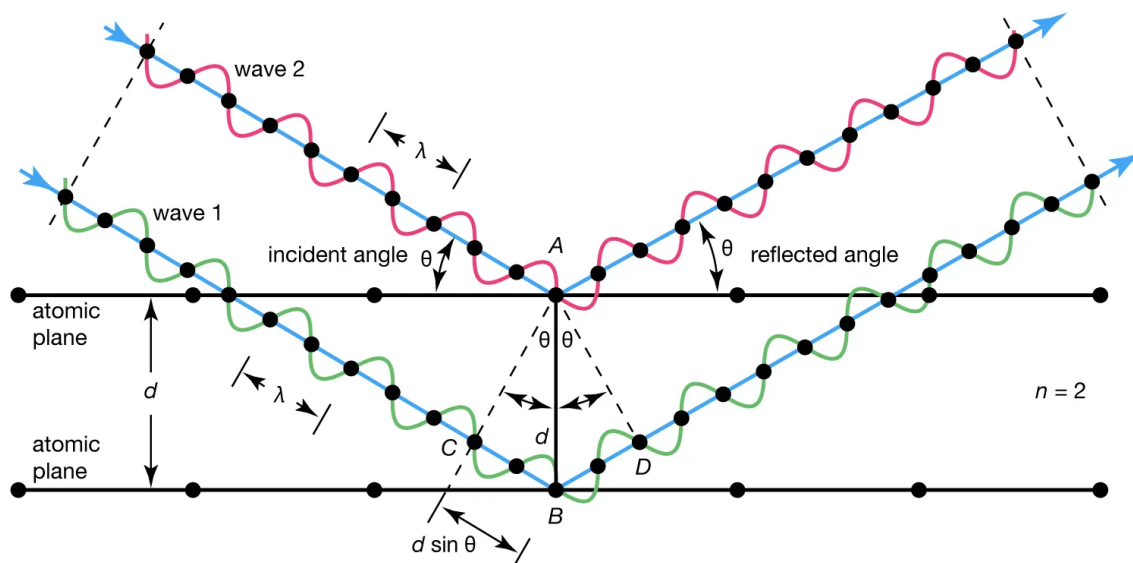
Představení 4D-STEM/PNBD

Jak jsme zmínili v úvodu, naším cílem je pomocí metod zpracování obrazu vylepšit snímky difrakčních obrazců natolik, abychom umožnili další zpracování. Konkrétně nám půjde o získávání práškových difraktogramů. Samotnou teorii difrakce se do detailu zabývat nebudeme, ale pro úplnost v krátkosti a zjednodušeně představíme základní principy. Uvažujme zjednodušený model krystalu, s krystalickými rovinami na kterých se odrážejí elektrony.



Obrázek 1.1: Uvažovaný zjednodušený model krystalu [1].

Prášková difraktografie je analytická metoda sloužící ke zkoumání vnitřní struktury krystalů. Fakt, že při průchodu záření krystalem dochází k difrakci, objevili Lawrence a William Henry Braggovy. Ti jako první v roce 1913 pozorovali difrakční obrazce vznikající při průchodu rentgenového záření krystalickou látkou. Představme si zjednodušený model krystalu se dvěma rovinami, jako máme na obrázku 1.2. Rentgenové záření, nebo v našem případě elektrony, dopadají na krystalické roviny, od kterých se odrážejí a dochází ke konstruktivní interferenci, čímž vznikají charakteristické difrakční obrazce.



© Encyclopædia Britannica, Inc.

Obrázek 1.2: Ukázka základní myšlenky Braggova zákona, odraz elektronů na krystalických rovinách [3]

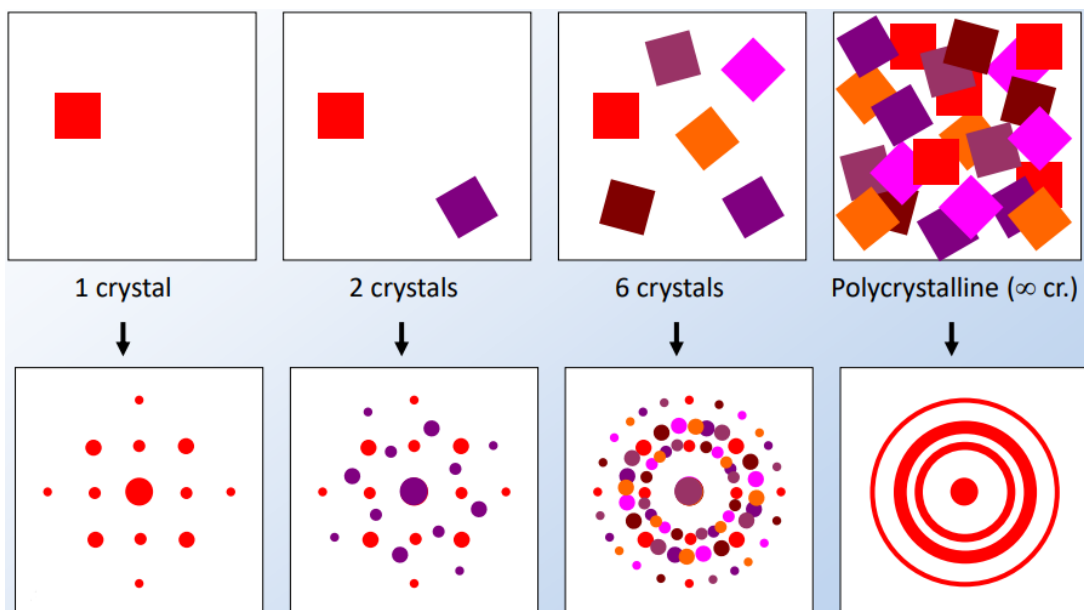
Braggův zákon má tvar

$$n\lambda = 2d \sin \theta,$$

kde n představuje řád difrakce, λ vlnovou délku, d je vzdálenost mezi rovinami krystalu a θ je úhel, pod kterým dopadají elektrony na krystal. Výsledný snímek difraktogramu obsahuje charakteristické obrazce složené z lokálních maxim, jejichž vzdálenosti odpovídají mezirovinným vzdálenostem v krystalu. Každý krystal produkuje unikátní difrakční vzorek, na jehož základě je možné vzorek identifikovat. Problém je, že Bragg se původně zabýval rentgenovou difrakcí. V našem případě je situace složitější, elektrony interagují se vzorky mnohásobně více, než rentgenové paprsky a ztrácejí energii. Kvůli tomu je zde požadavek na velmi tenký vzorek a vysoké energie. Jak jsme již ale zmínili, metoda 4D-STEM/PNBD používá skenovací elektronový mikroskop, kde jsou energie obecně nižší než u transmisních elektronových mikroskopů.

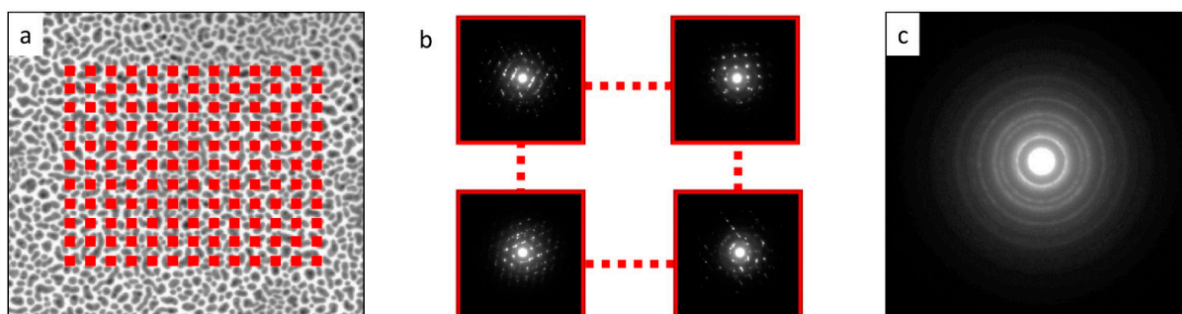
Dnes jsou již znalosti difrakce mnohem dále. Nyní již víme, že se elektrony neodrážejí na myšlených krystalových rovinách, a dokážeme dobře vysvětlit difrakci lépe pomocí kinematické a dynamické teorie difrakce [4, 5]. Těmito teoriemi se zde nebudeme detailně zabývat, pouze shrneme některé principy v kapitole 4, ovšem stojí za zmínku, že z obou těchto teorií vyplyne Braggův zákon také.

Myšlenka snímání práškových difraktogramů je znázorněna na obrázku 1.3, kde máme zobrazené situace pro vzorky s různým počtem krystalů a příslušný difraktogram. Jak vidíme, náhodná orientace krystalů způsobuje i náhodnou orientaci difrakčních obrazců, i když mezirovinné vzdálenosti jsou stále stejné. Takto nám vznikne práškový difraktogram s typickými soustřednými kružnicemi.



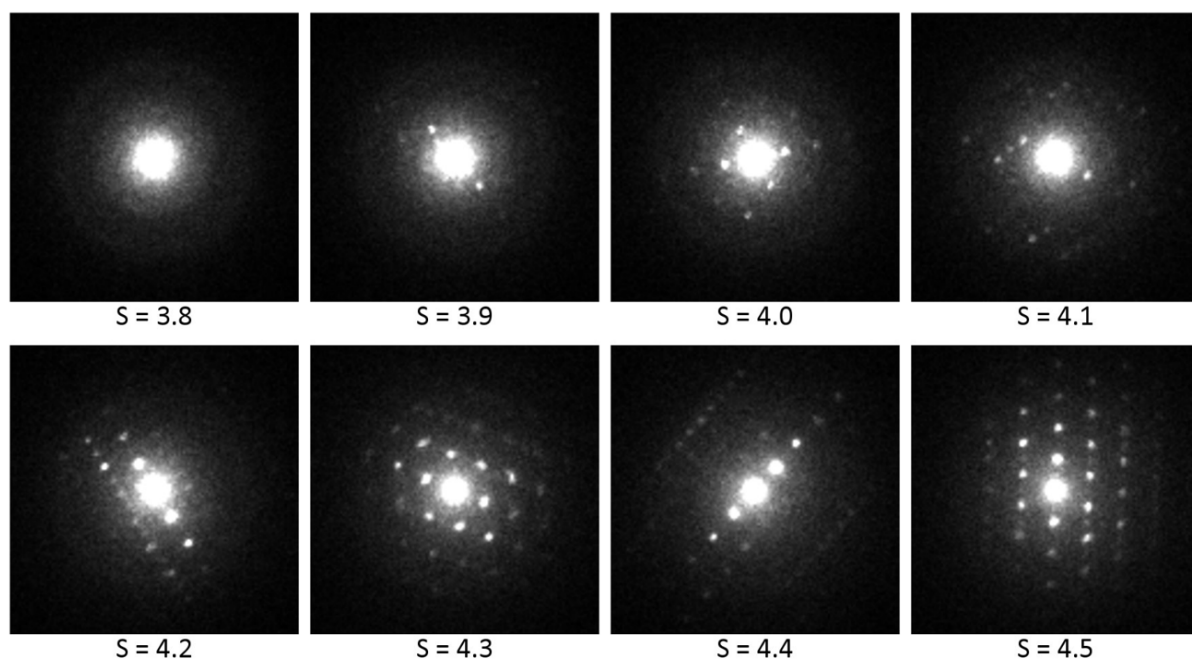
Obrázek 1.3: Princip práškové difraktografie v TEM

V případě 4D-STEM/PNBD a elektronového mikroskopu je situace mírně odlišná, i když základní principy zůstávají stejné. Nemůžeme "prosvítit" celý vzorek naráz jako v případě TEMu, elektronový paprsek máme totiž zaostřený v malé oblasti vzorku. V prvním kroku tedy pořídíme obyčejný bright field snímek vzorku. V něm definujeme oblasti pro snímání samotných difraktogramů. Oblasti volíme dostatečně daleko od sebe, abychom nezachytili stejný krystal dvakrát. V posledním kroku sečteme všechny difraktogramy a získáme tím práškový difraktogram. Postup je znázorněn na obrázku 1.4

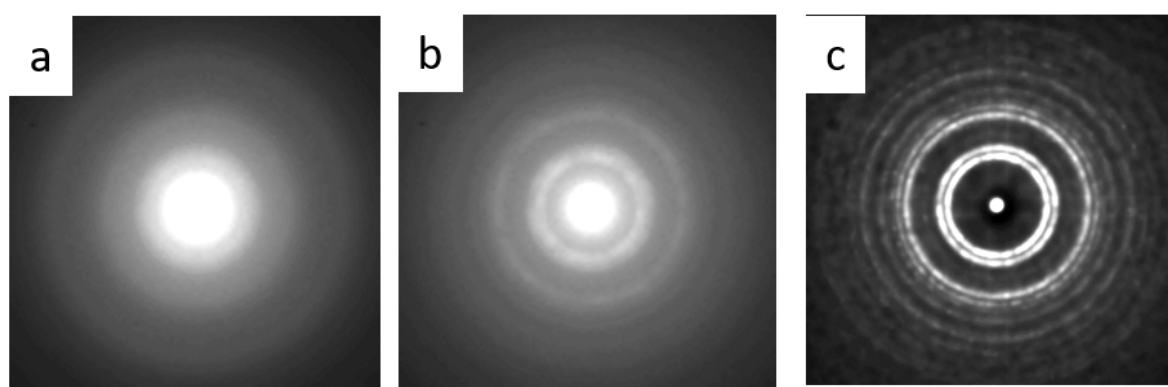


Obrázek 1.4: Princip 4D-STEM/PNBD. (a) bright field vzorku s vyznačenými oblastmi pro snímání difraktogramů, (b) jednotlivé difraktogramy nasnímané ve vyznačených oblastech, (c) Výsledný práškový difraktogram získaný sečtením jednotlivých difraktogramů z vyznačených oblastí[8]

Jak se ukazuje, tak u vzorků, které špatně difraktují elektrony, samotné sečtení difrakčních záznamů nestačí. A zde se již dostáváme k motivaci využití metod zpracování obrazu. Pro některé vzorky stačilo pouze odfiltrovat soubory s nízkou entropií [7], viz obrázek 1.6, pro získání dobrého práškového difraktogramu, ale tento postup není postačující pro naprostou většinu vzorků. Proto se pokusíme vylepšit kvalitu difrakčních záznamů a tím i práškových difraktogramů.



Obrázek 1.5: Ukázka difrakčních záznamů s různou entropií.



Obrázek 1.6: Ukázka práškových difraktogramů posčítaných (a) bez úprav, (b) s vyfiltrováním souborů s nízkou entropií, (c) s vyfiltrováním souborů s nízkou entropií a dekonvolucí zbylých difrakčních záznamů.

Detailní popis předzpracování dat je sepsán v experimentální sekci [9].

Kapitola 2

Dosavadní přístup

Z předchozí motivace vyplývá, že snímky difraktogramů jsou silně zašuměné a rozmazané. Získat kvalitní práškový difraktogram bez předchozího zpracování dat lze jen u malého počtu vzorků, které dobře difraktují elektrony - například u zlata. U většiny vzorků však nelze získat kvalitní práškový difraktogram ani vyfiltrováním souborů s nízkou entropií. Je potřeba dalších metod zpracování obrazu. Jako jedna z technik pro eliminaci degradace difraktogramů se nabízí dekonvoluce. Knihovna STEMDIFF nabízí dekonvoluci Richardson Lucyho algoritmem. My jsme tuto knihovnu v [9] rozšířili o regularizovanou verzi tohoto algoritmu. Také jsme navrhli alternativní přístup kompletně obcházející potíže spojené s dekonvolucí. Nejprve si ale připomeňme, jakým způsobem modelujeme rozmazání a degradaci obrazu.

2.1 Vznik obrazu

Než odvodíme Richardson-Lucyho algoritmus, připomeňme si, jakým způsobem modelujeme rozmazání a degradaci obrazu. Předpokládejme, že jsme na detektoru zachytili snímek $I(x)$. Tento snímek je dále rozmazaný rozptylovou funkcí $P(x)$. Naším cílem bude získat originální obraz $O(x)$ bez rozmazání. Náš snímek lze popsat jako

$$I(x) = \int_{y=-\infty}^{\infty} P(x-y)O(y)dy, \quad (2.1)$$

kde $x = (x_1, x_2)$ představuje jeden vybraný pixel. Toto značení volíme, abychom byli konzistentní s variantou, kdy máme snímek i PSF vektorizované. Tento popis modeluje rozmazání snímku, kde se dále setkáváme s aditivním šumem. Celkově tedy máme

$$I(x) = (P * O)(x) + N(x), \quad (2.2)$$

kde $N \sim \mathcal{N}(0, \sigma^2)$ představuje Gaussovský šum. Pro úplnost ještě uvedeme, co se rozumí rozptylovou funkcí.

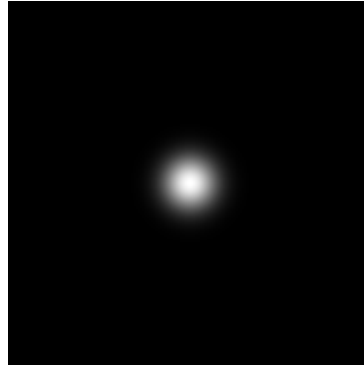
Definice: Funkci $P : \mathbb{R}^2 \rightarrow \mathbb{R}$ nazveme rozptylovou funkcí (PSF z angl. Point Spread Function), pokud splňuje:

$$\int_{-\infty}^{\infty} f(x)dx = 1. \quad (2.3)$$

V diskretním případě matici $P \in \mathbb{R}^{m \times n}$, $m, n \in \mathbb{N}$ nazveme PSF pokud splňuje

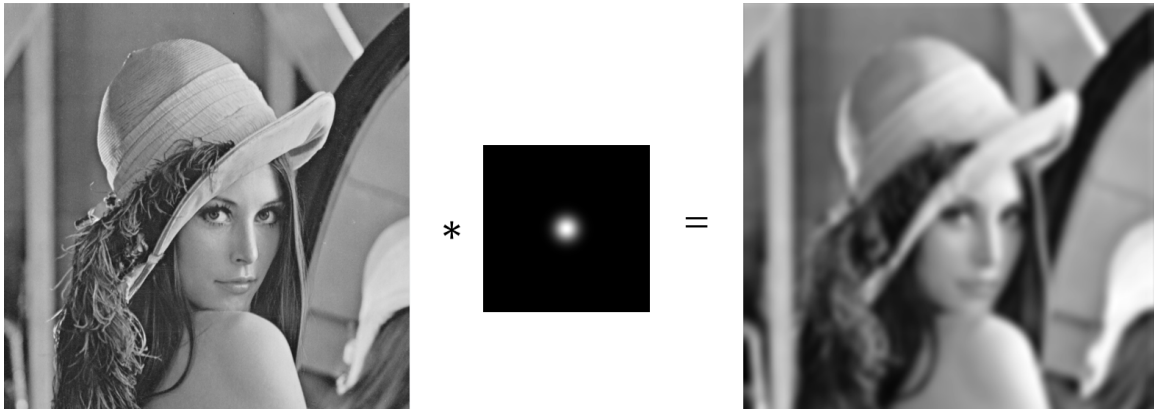
$$\sum_{x_1}^m \sum_{x_2}^n P(x_1, x_2) = 1. \quad (2.4)$$

Požadavek na normování PSF je zde čistě z praktických důvodů. Kdyby součet rozptylové funkce nebyl roven jedné, tak by nám snímky v průběhu dekonvoluce měnily intenzitu. Rozptylová funkce nám v praxi říká, jaký snímek zachytíme daným optickým systémem, bude-li na vstupu Diracova δ -funkce. Níže na obrázku 2.1 máme příklad Gaussovské rozptylové funkce.



Obrázek 2.1: Příklad Gaussovské rozptylové funkce

Pokud spočítáme konvoluci ostrého snímku s rozptylovou funkcí, získáme snímek rozmazaný.



Obrázek 2.2: Demonstrace rozmazání obrazu podle modelu 2.2. K rozmazání byla použita Gaussovská rozptylová funkce z obrázku 2.1

Poznámka: Gaussovská rozptylová funkce se v praxi objevuje velmi často, např. v důsledku špatného zaostření. Avšak právě u elektronové difrakce se poněkud neintuitivně objevuje Voigtova distribuce jako PSF. To sebou přináší problém s odhadováním rozptylové funkce, protože nelze snadno nafitovat normální rozdělení do difrakčních maxim. Detailně se charakterem dat ze 4D-STEM metody budeme zabývat v kapitole 4, kde se pokusíme data nasimulovat.

2.2 Dekonvoluce difraktogramů

V průběhu let byla představena řada dekonvolučních algoritmů. Jak lze ukázat, v mikroskopii má smysl uvažovat obraz vznikající Poissonovským procesem, což vede na algoritmus představený v roce 1979 Williamem Richardsonem [10] a nezávisle na něm o pár let později Leonem Lucym [11]. Stojí za zmínku, že jejich odvození není příliš intuitivní. My zde poskytneme pouze náznak, jak lze Richardson-Lucyho algoritmus odvodit. Kompletní a detailně vysvětlené odvození je k dispozici v [9].

Na základě faktu, že obraz vzniká Poissonovským procesem [12, 13], a z modelu vzniku obrazu představeného výše, můžeme zapsat věrohodnostní funkci jako

$$p(I|O) = \prod_x \frac{[(P * O)(x)]^{I(x)} \cdot e^{-(P * O)(x)}}{I(x)!} \quad (2.5)$$

Zlogaritmováním získáme funkcionál

$$\tilde{L}(O) = \ln p(I|O) = \int_x I(x) \ln[(P * O)(x)] - (P * O)(x) - \ln[I(x)!] dx \quad (2.6)$$

Tento funkcionál chceme maximalizovat. Poslední člen je konstanta a lze jej proto zanedbat. Zároveň maximalizace funkcionálu $L(O)$ je ekvivalentní s minimalizací $-\tilde{L}(O)$. Chceme tedy najít minimum

$$-\tilde{L}(O) = L(O) = \int_x (P * O)(x) - I(x) \ln[(P * O)(x)] dx \quad (2.7)$$

Minimalizací $L(O)$ získáme podmínku

$$P(-x) * \frac{I(x)}{(P * O)(x)} = 1. \quad (2.8)$$

Využijme nyní předpokladu, že obraz se bude se zvyšujícím počtem iterací měnit stále méně. Bude tedy platit

$$\frac{O_{k+1}}{O_k} \approx 1 \quad (2.9)$$

pro velká k . Dosazením do 2.8 získáme iterativní podobu Richardson-Lucyho algoritmu

$$O_{k+1} = O_k \left[P^T * \frac{I}{(P * O_k)} \right]. \quad (2.10)$$

Tato podoba Richardson-Lucyho algoritmu je také známá jako multiplikativní forma. Zde jsme jen vynechali závislost na x a zapsali $P(-x) = P^T$.

Tato varianta Richardson Lucyho algoritmu byla dosud používána v knihovně Stemdiff. My jsme v [9] přidali dvě regularizované varianty tohoto algoritmu - Richardson Lucyho algoritmus s Tikhonov-Millerovou a TV regularizací - s cílem omezit vliv šumu a dekonvolučních artefaktů. Připomeňme si tvar těchto algoritmů a v krátkosti naznačme jejich odvození.

Postup je velmi podobný. V případě Tikhonov-Millerovy (nebo také L_2) regularizace minimalizujeme funkcionál

$$L(O) = \int_x (P * O)(x) - I(x) \ln[(P * O)(x)] dx + \lambda_{TM} \int_x |\nabla O(x)|^2 dx, \quad (2.11)$$

kde λ_{TM} představuje regularizační parametr. Dojdeme k podmínce

$$\int_x P(-x) dx - P(-x) * \frac{I(x)}{(P * O)(x)} - 2\lambda_{TM} \Delta O(x) \stackrel{!}{=} 0. \quad (2.12)$$

a z faktu, že integrál z PSF je roven jedné, dostaneme finální podobu Richardson-Lucyho algoritmu s L_2 regularizací

$$O_{k+1} = \left[P^T * \frac{I}{(P * O_k)} \right] \cdot \frac{O_k}{1 + 2\lambda_{TM} \Delta O_k} \quad (2.13)$$

Výsledný algoritmus účinně potlačuje šum a artefakty, ovšem za cenu mírného opětovného rozmazání. Tikhonovova regularizace jde proti tomu, čeho se snažíme dosáhnout.

V případě TV (nebo také L_1) regularizace minimalizujeme

$$L(O) = \int_x (P * O)(x) - I(x) \ln[(P * O)(x)] dx + \lambda_{TV} \int_x |\nabla O(x)| dx, \quad (2.14)$$

kde λ_{TV} představuje regularizační parametr. Výsledný Richardson-Lucyho algoritmus s L_1 regularizací má tvar

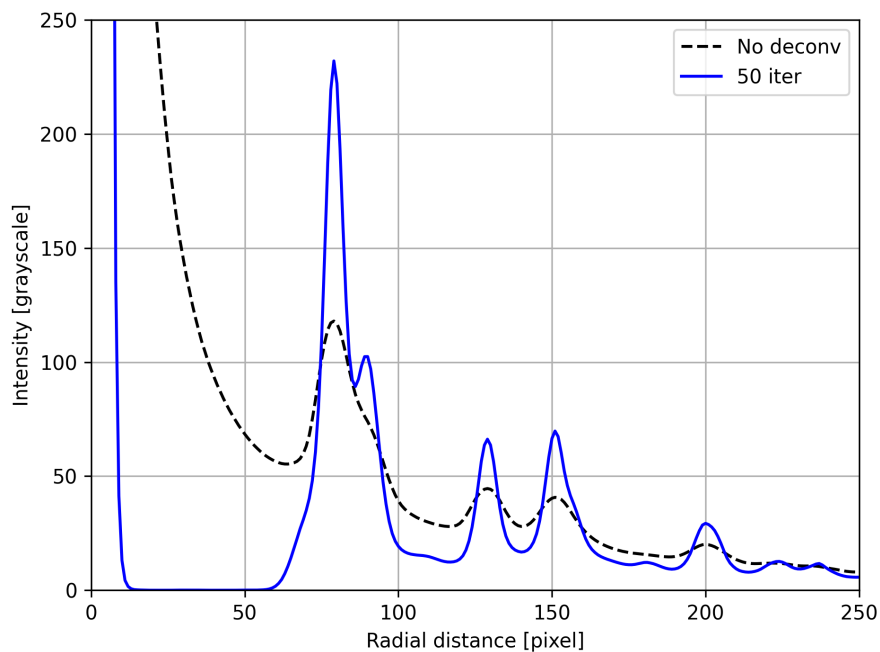
$$O_{k+1} = \left[P^T * \frac{I}{P * O_k} \right] \frac{O_k}{1 - \lambda_{TV} \operatorname{div} \left(\frac{\nabla O_k}{|\nabla O_k|} \right)} \quad (2.15)$$

Důvod, proč jsme implementovali tyto regularizované verze, je prostý. Jsou mnohem robustnější za přítomnosti šumu, což můžeme demonstrovat na následujícím obrázku 2.3. Jak je na první pohled patrné, regularizace dobře potlačuje šum. L_1 regularizace navíc netrpí problémem s opětovným rozmazáním snímků, zachovává hrany, ale na druhou stranu vyhlazuje velmi jemné struktury.

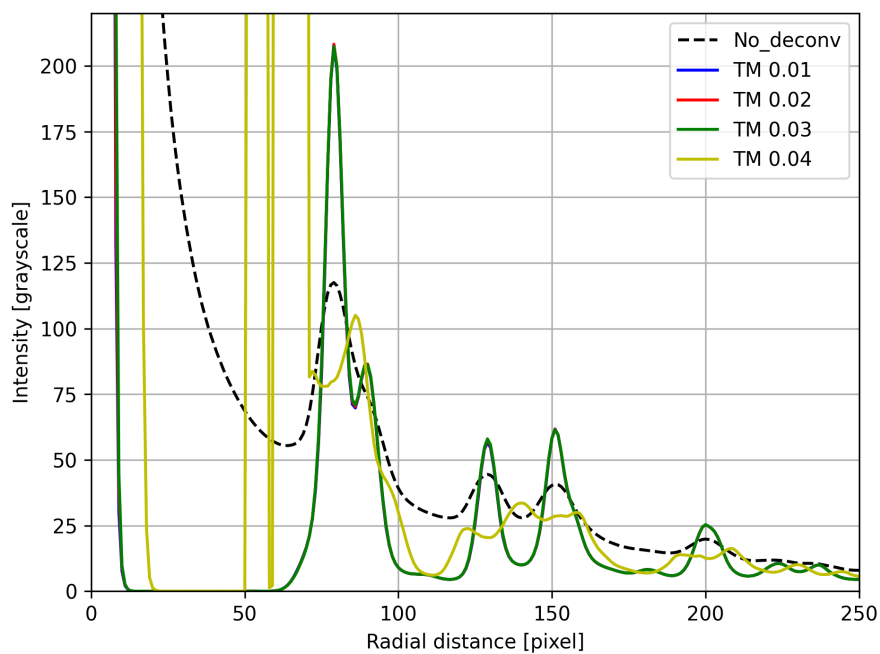


Obrázek 2.3: Srovnání dekonvoluce Richardson-Lucyho algoritmem při rozmazání Gaussovskou PSF s aditivním šumem (a) dekonvoluce bez regularizace (b), s TM regularizací (c) a s TV regularizací (d)

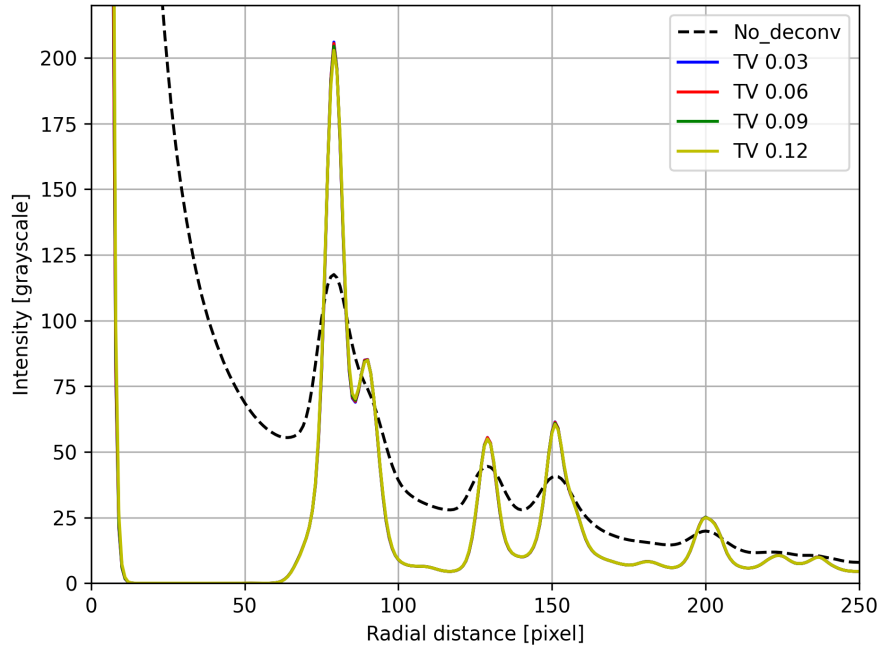
Bohužel se ukázalo, že regularizace v případě difraktogramů nepřináší prakticky žádné zlepšení – výsledky jsou víceméně totožné s běžnou variantou Richardson-Lucyho algoritmu. Zde jako příklad uvedeme výsledky dekonvoluce všemi třemi variantami Richardson Lucyho algoritmu pro různá nastavení regularizačního parametru na vzorku krystalů zlata. Graf závislosti vidíme na obrázcích 2.4, 2.5 a 2.6. Výsledky jsou prakticky totožné, navíc se zde setkáváme s nestabilitou L_2 regularizace. To má za důsledek další dekonvoluční artefakty, viz obrázek 2.7



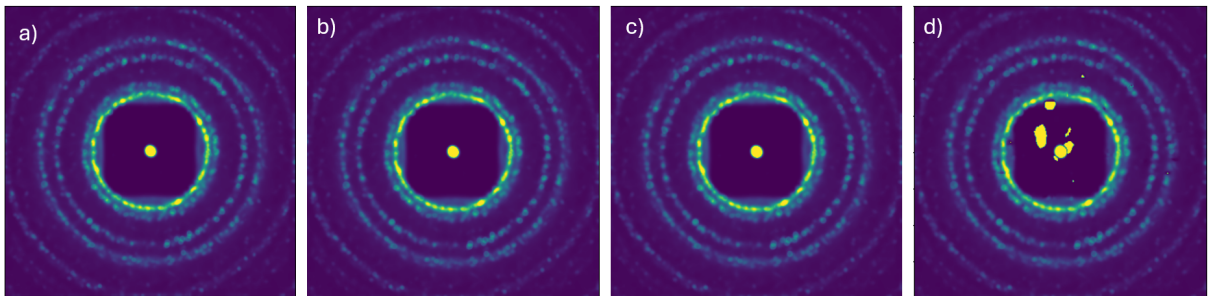
Obrázek 2.4: Srovnání vlivu počtu iterací na výsledný difraktogram. Dekonvoluce Richardson-Lucyho algoritmem bez regularizace pro 0 a 50 iterací. Vzniká nové lokální maximum.



Obrázek 2.5: Srovnání dekonvoluce pro různá nastavení regularizačního parametru při TM regularizaci



Obrázek 2.6: Srovnání dekonvoluce pro různá nastavení regularizačního parametru při TV regularizaci



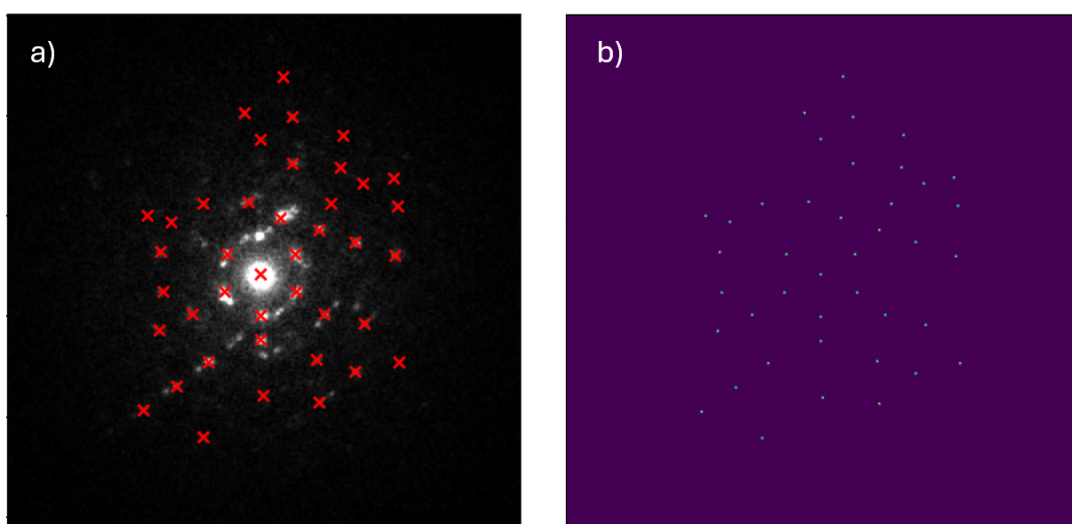
Obrázek 2.7: Srovnání dekonvoluce pro různá nastavení regularizačního parametru při TM regularizaci a ukázka nestability pro vysoké nastavení regularizačního parametru.

S dekonvolucí se pojí celá řada dalších problémů. Nejen že se regularizace ukázala jako neúčinná, ale pro získání dobrých výsledků je nutné mít dobrý odhad rozptylové funkce. Získat tento odhad je obtížná úloha sama o sobě. Při nepřesném odhadu PSF budou výsledky trpět dalšími dekonvolučními artefakty, především ringinem. Nás v konečném důsledku zajímá průběh intenzity v závislosti na vzdálenosti od středu snímku. Ringing vytváří falešné soustředné kružnice, u kterých je těžké rozhodnout, zdali vznikly jako artefakt při dekonvoluci, či byly skutečně naměřené. Dalším problémem s dekonvolucí je výpočetní náročnost, a to i přes fakt, že se nám v [9] podařilo optimalizovat dekonvoluční algoritmy pro výpočty na GPU.

2.3 Detekce difrakčních obrazců

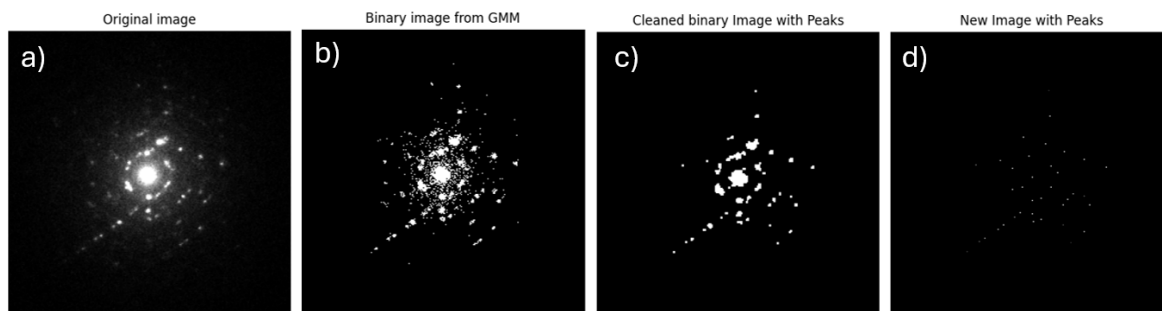
Všechny problémy spojené s dekonvolucí nás vedly ke kompletní změně přístupu k rekonstrukci práškových difraktogramů. Jak jsme již okomentovali, nás zajímá pouze průběh intenzity v závislosti na vzdálenosti od středu snímku. Nám by stačilo pouze znát polohu a intenzitu jednotlivých difrakčních maxim v každém snímku. To je také problematická úloha, vzhledem k charakteru dat (více viz sekce 4) obyčejné prahování nebude fungovat - snímky mají neuniformní pozadí a velké množství šumu.

V minulosti jsme vyzkoušeli 3 různé metody, jak lokalizovat difrakční maxima. Nejprve jsme otestovali obyčejný maximový filtr, tím jsme získali polohu difrakčních maxim, viz. obrázek 2.8. Poté jsme vzali malé okolí, typicky 3 až 5 pixelů okolo tohoto bodu, sečetli intenzitu pixelů z tohoto okolí a na souřadnice daného maxima vložili tento součet do prázdného snímku, ve snaze odstranit pozadí.



Obrázek 2.8: Ukázka detekce difrakčních maxim v difraktogramu vzorku zlata, (a) detekované polohy lokálních maxim, (b) zpětně zrekonstruovaný difraktogram

Tato metoda nefungovala příliš dobře. Jako další se nabízela Otsuova metoda. Cílem bylo oprahovat snímek a tím oddělit pozadí a šum od difrakčního obrazce. Ani to nepřinášelo použitelné výsledky. Nakonec jsme se rozhodli celý snímek modelovat jako Gaussovskou směs. Tato metoda je založena na předpokladu, že data jsou generována z několika Gaussovských rozdělení, z nichž každé má svou vlastní střední hodnotu a rozptyl. GMM je často využíván k shlukování, ale má své využití i pro segmentaci. V prvním kroku modelu jsou data předzpracována stejně jako u předchozí metody, tedy oprahováním a clippingem kvůli centrálnímu maximu. Poté se pomocí Expectation-Maximization (EM) algoritmu iterativně odhadují parametry jednotlivých Gaussovských komponent. Výsledkem je pravděpodobnostní rozdělení každého pixelu ke komponentě, což umožňuje robustní segmentaci i v přítomnosti šumu a neuniformního pozadí. Výstupem je binární obraz, který ještě pomocí morfologických operací vyčistíme od zbytkového šumu. Tato metoda je silnější než jednoduché prahování, protože dokáže lépe modelovat komplexní rozdělení intenzit v obraze. Proces segmentace maxim je znázorněn na obrázku 2.9.



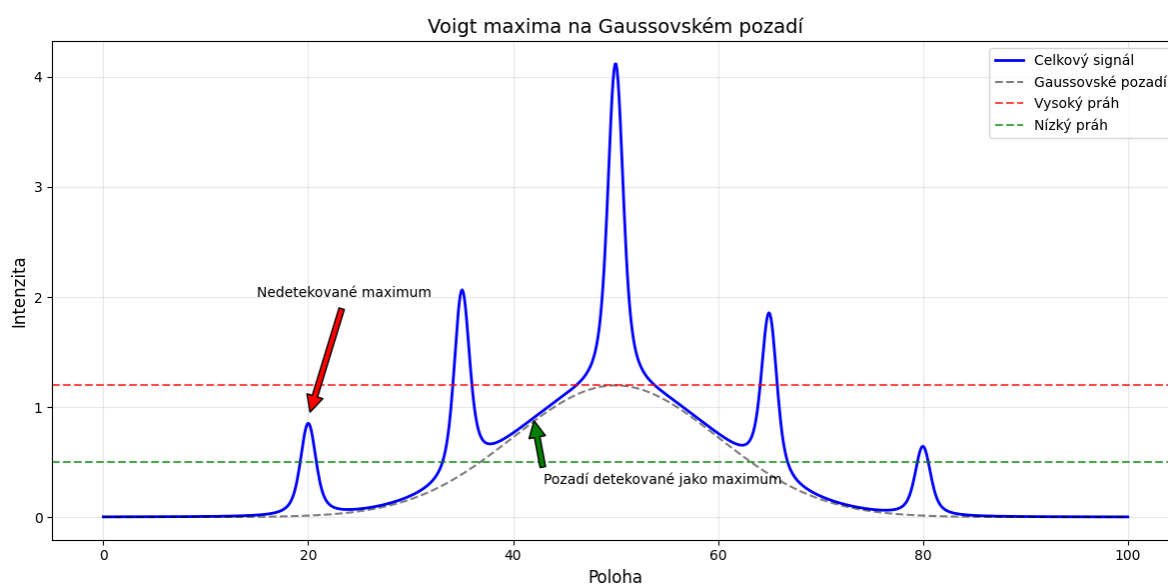
Obrázek 2.9: Ukázka procesu segmentace difraktogramu vzorku zlata pomocí GMM, (a) originální snímek, (b) binární maska získaná z GMM, (c) binární maska vyčištěná morfologickými operacemi, (d) zrekonstruovaný difraktogram.

GMM se ukázala jako velmi silný nástroj pro rekonstrukci difraktogramů a jednoznačně prokázala, že segmentace by mohla představovat robustní metodu, jež netrpí na artefakty, je rychlá a podává dobré výsledky. Ve finálním srovnání budeme nově navržené metody srovnávat s dekonvolucí a právě se segmentací pomocí GMM.

Kapitola 3

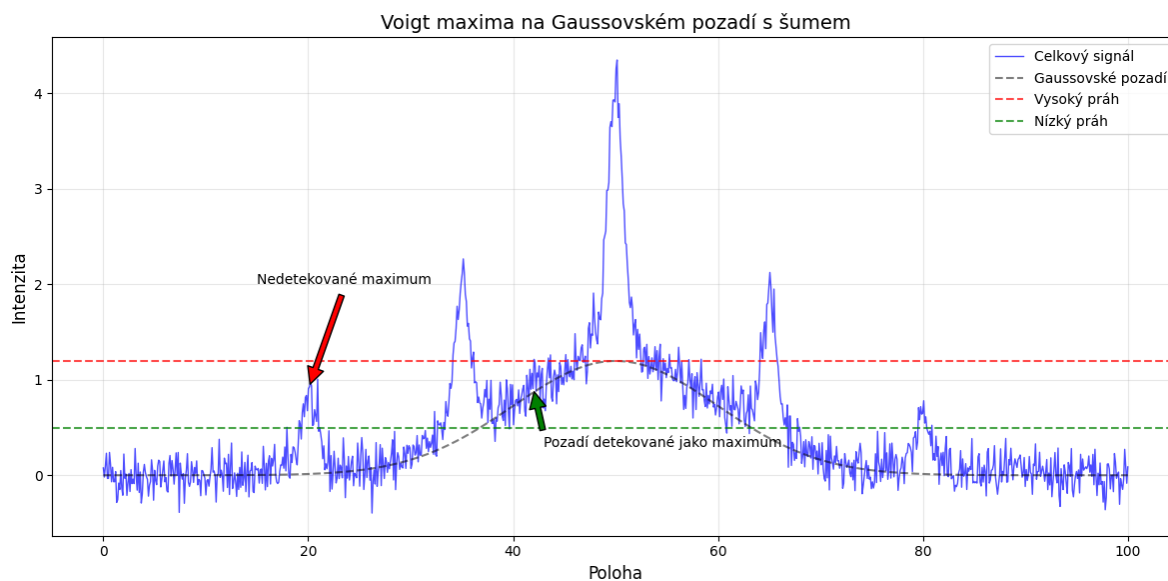
Detekce pomocí metod zpracování obrazu

Největší problém s detekcí difrakčních obrazců spočívá v silném zašumění a neuniformním pozadí. To nám brání použít jednoduché prahování. To můžeme demonstrovat na jednoduchém příkladu. Z teorie difrakce víme, že difrakční maxima mají tvar Voigtovy distribuce. Zároveň panuje obecná shoda, že pozadí má tvar normálního rozdělení. Vytvořme si tedy ve 2D situaci s několika Voigtovými distribucemi na Gaussovském pozadí a dvěma nastaveními pro práh.



Obrázek 3.1: Ukázka neefektivity jednoduchého prahování.

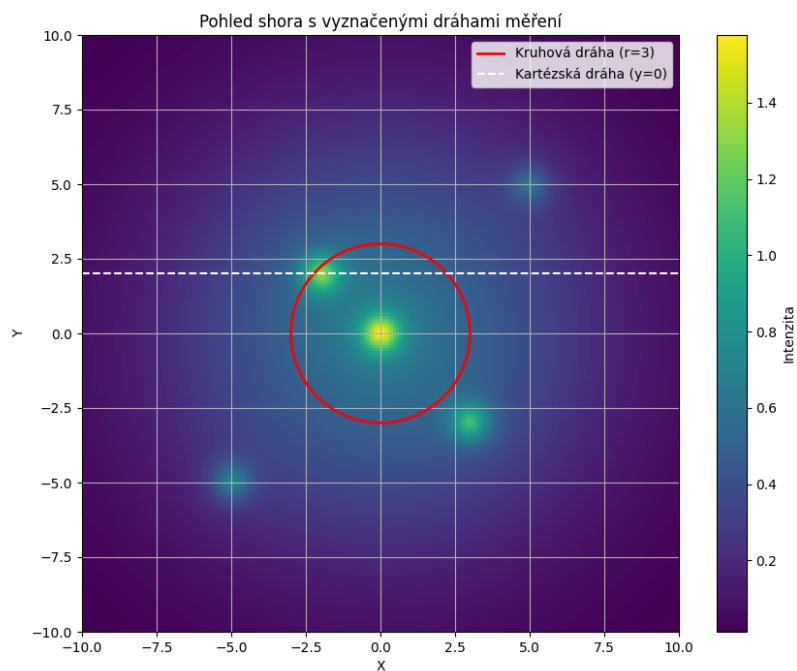
Jak vidíme, když nastavíme práh příliš vysoko, nedetekujeme slabší maxima dále od středu difrakto-gramu. Když nastavíme práh dost nízko, abychom zachytili i slabší maxima, blíže u středu budeme detekovat Gaussovské pozadí jako peak. Tento přístup je tedy naprosto nevhodný, a to v našem příkladu ještě ignorujeme vliv silného zašumění. Podívejme se, jak situace vypadá v případě aditivního šumu.



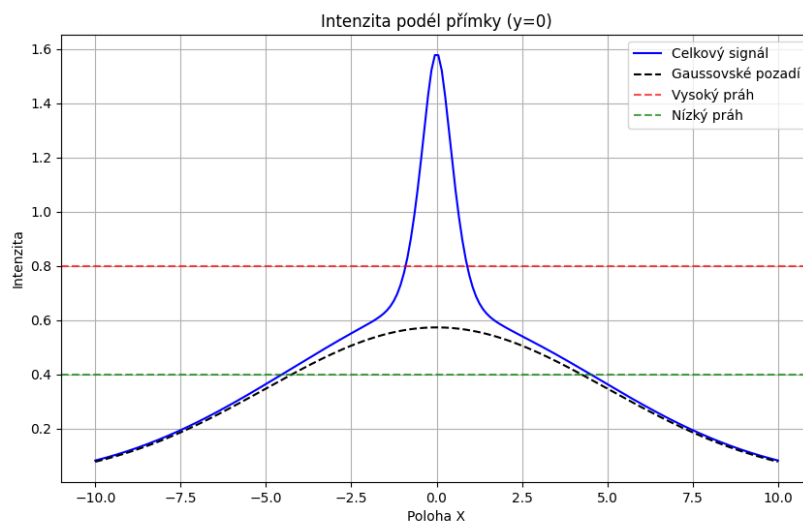
Obrázek 3.2: Ukázka neefektivitu jednoduchého prahování v případě dalšího zašumění snímku.

Bez ohledu na volbu prahu, ať už uvažujeme situaci, kdy se obejdeme bez slabších maxim, nebo situaci, kdy se budeme snažit vypořádat s falešnou detekcí pozadí, se za přítomnosti šumu snadno stane, že v blízkosti prahu budeme detekovat velké množství falešných maxim, kdy v důsledku šumu překročíme práh, aniž by se na dané pozici nacházel difrakční peak.

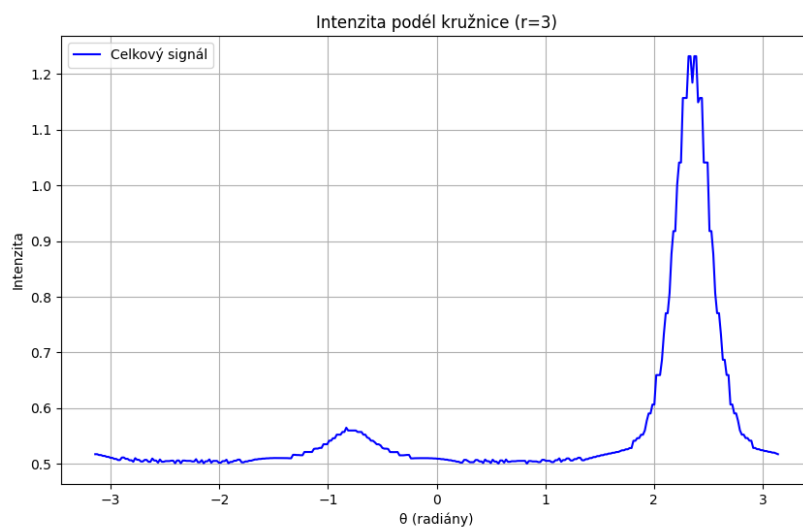
Pokusíme se tento problém vyřešit využitím jednoho předpokladu. Uvažujme, že pozadí je Gaussovské a symetrické. Převedením snímku do polárních souřadnic bude každý řádek snímku odpovídat soustředné kružnici kolem středu a pozadí v tomto řádku bude konstantní, protože měříme intenzitu podél povrchu Gaussovského pozadí. Myšlenku za převodem do polárních souřadnic demonstrují obrázky 3.3, 3.4 a 3.5



Obrázek 3.3: Ukázka myšlenky převodu do polárních souřadnic

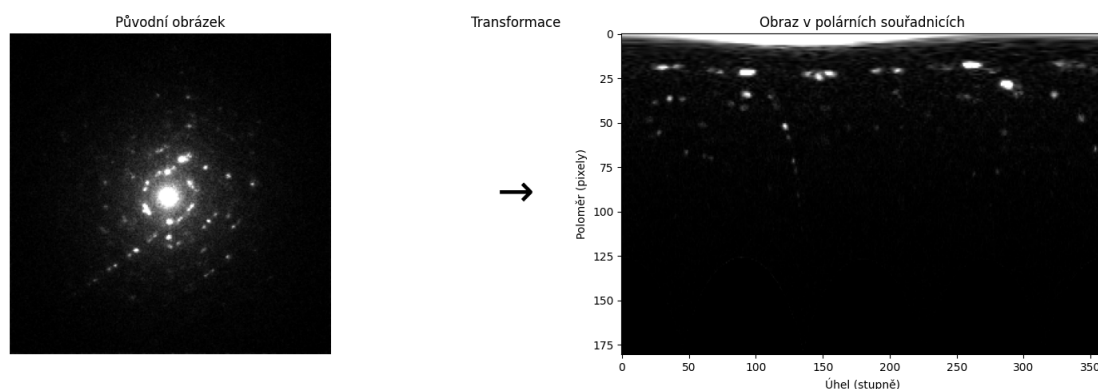


Obrázek 3.4: Ukázka grafu intenzit v jednom řádku snímku v kartézských souřadnicích.



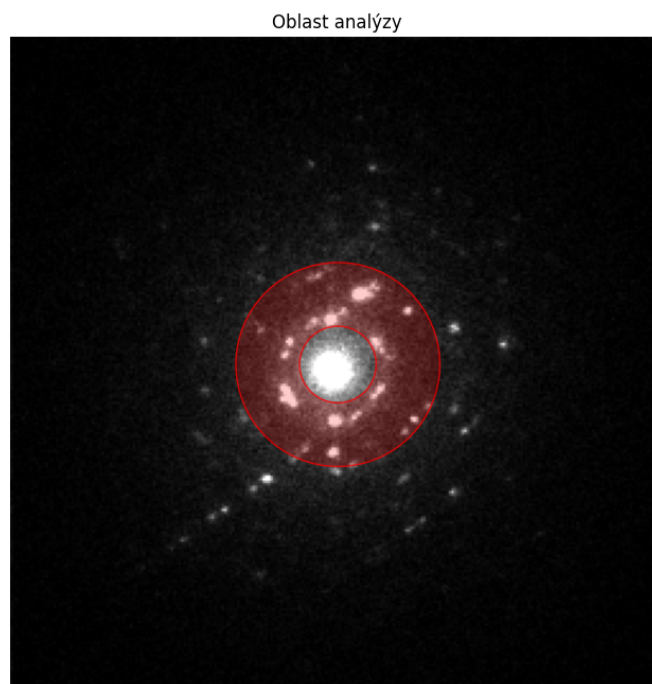
Obrázek 3.5: Ukázka grafu intenzit v jednom řádku snímku v polárních souřadnicích.

Vyzkoušejme, jak tento přístup bude fungovat na vzorku krystalů zlata. Nejprve převedeme snímek do polárních souřadnic, viz obrázek 3.6.



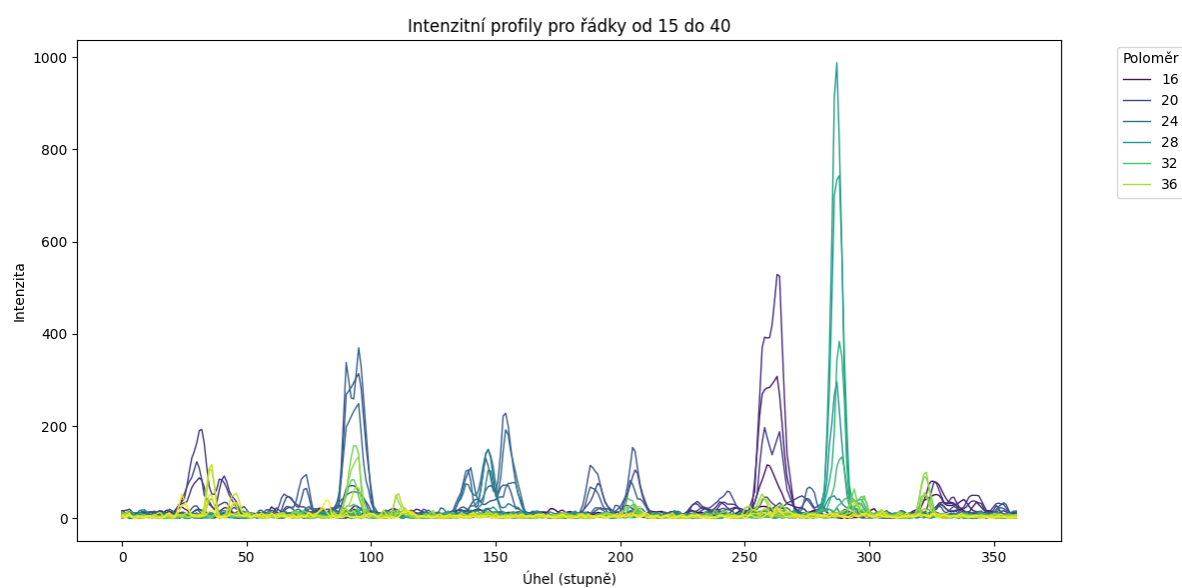
Obrázek 3.6: Difraktogram převedený do polárních souřadnic.

Centrální maximum nás nezajímá, a proto ho vyloučíme a budeme zkoumat jen některé řádky snímku v polárních souřadnicích. Pro dobrou viditelnost jsme zvolili jen oblast ve vzdálenosti od 16 do 36 pixelů od středu. Zvolená oblast je zvýrazněná na obrázku 3.7.



Obrázek 3.7: Ukázka grafu intenzit v jednom řádku snímku v kartézských souřadnicích.

Nakonec se podívejme na průběh intenzit pro jednotlivé řádky ve zvolené oblasti. Na obrázku 3.8 vidíme, že i když problém s šumem přetrvává, maxima jsou naprosto jasně identifikovatelná.



Obrázek 3.8: Ukázka grafu intenzit ve zvolené oblasti.

3.1 Model Gaussovské směsi po řádcích

V [9] jsme jen v krátkosti navrhli GMM jako jednu z možností, jak vysegmentovat difrakční obrazec. Později se ukázalo, že to je prozatím nejrobustnější metoda, kterou máme. I tak se vyskytovaly problémy s neuniformním pozadím. Bylo zapotřebí uvažovat 3 složky každého snímku: maxima, šum a pozadí. I tak bylo zapotřebí užít dalších morfologických operací pro vyčištění zbytkového šumu. V důsledku toho jsme přicházeli o slabší maxima dále od středu snímku, protože morfologické operace je odstranily. Další problém nastal, když byly dvě maxima blízko sebe. Jejich maska se slila do jednoho objektu a my jsme poté umístili součet intenzit v této masce do těžiště tohoto slitého objektu, čímž jsme zanášeli další chybu do rekonstruovaného difraktogramu. Obrázek 3.8 nám ale napovídá alternativní přístup. Předpokládáme Gaussovské symetrické pozadí, v polárních souřadnicích bude nyní každý řádek mít konstantní úroveň pozadí. Pro každý řádek můžeme tedy nafitovat model Gaussovské směsi. Z tohoto fitu poté můžeme zkusit nasamplovat nový snímek difraktogramů, a ty použít pro výsledný součet do práškového difraktogramu.

Tentokrát se podívejme na GMM detailněji a obecně. Než se dáme do kompletního vysvětlení, měli bychom poukázat na jeden teoretický nedostatek tohoto přístupu. My totiž z teorie difrakce víme, že maxima v difrakčních obrazcích neodpovídají normálnímu rozdělení, nýbrž Voigtově distribuci. A tak vzniká otázka, jestli si můžeme dovolit tento rozdíl ignorovat nebo ne.

Voigtova distribuce je definována jako konvoluce Gaussovského rozdělení a Lorentzovo rozdělení, tedy:

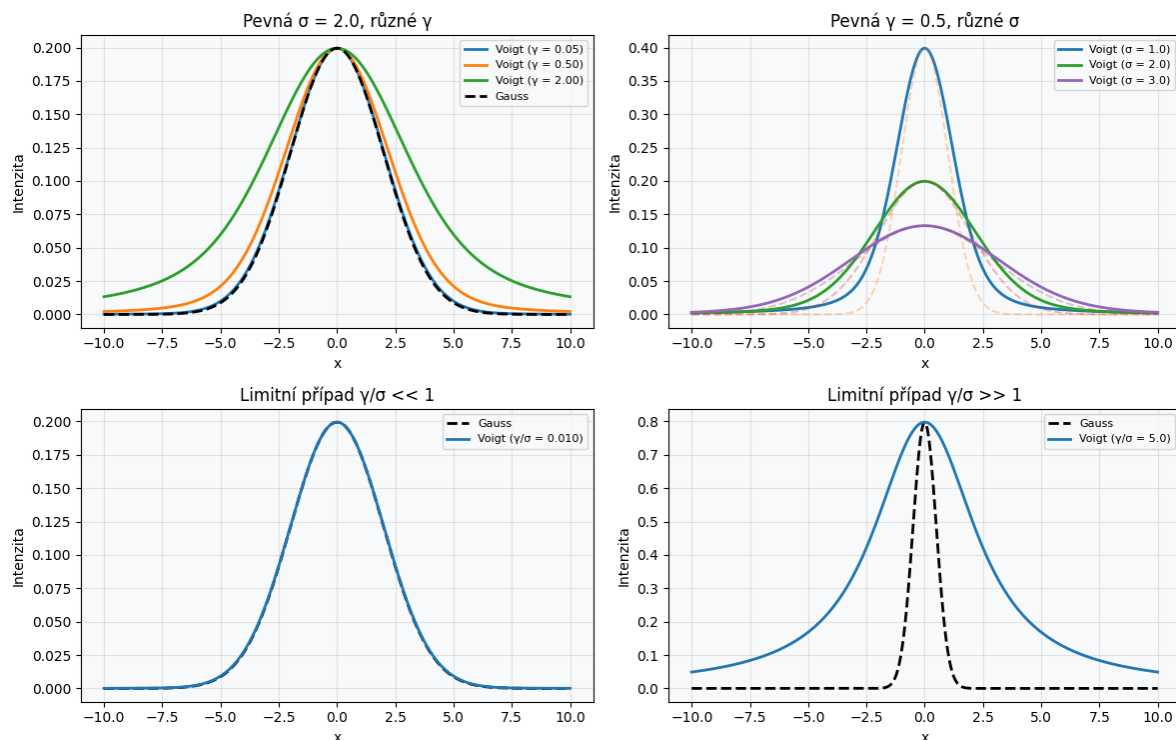
$$V(x; \sigma, \gamma) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-x'^2/(2\sigma^2)}}{\sqrt{2\pi}\sigma^2} \frac{\gamma/\pi}{(x - x')^2 + \gamma^2} dx'.$$

Jedním z problémů je neexistence konečných momentů. Lorentzova distribuce nemá konečné momenty, a jelikož Voigtovo rozdělení je konvoluce Lorentzova a Gaussova rozdělení, tak chvosty asymptoticky konvergují k

$$V(x) \sim \frac{\gamma}{\pi x^2}$$

pro $|x| \rightarrow \infty$. To znamená, že rozptyl není konečný, pokud $\gamma > 0$. Pokud jde o praktické experimenty, můžeme využít dvou předpokladů. Prvním je empirické pozorování - v praxi se Lorentzovská složka Voigtovy distribuce jeví jako slabá, tj. $\frac{\gamma}{\sigma} \ll 1$. Dále je potřeba myslet na to, že náš senzor má rozlišení pouze 256×256 pixelů, takže pravděpodobnost, že některé pozorování padne do těžkého chvostu je velmi malá. První bod dobře demonstruje obrázek 3.9

Porovnání Gaussových a Voigtových rozdělení



Obrázek 3.9: Provnání normálního a Voigtova rozdělení pro různá nastavení parametrů.

Druhý bod můžeme využít tak, že prostě ořízneme distribuci tak, aby řekněme 99% pravděpodobnostní hmoty leželo v naší zkoumané oblasti, za předpokladu $|x| \leq M$ pak $P(|X| > M) < \epsilon$. Získáme tak

$$V_M(x) = \begin{cases} \frac{V(x)}{F_V(M) - F_V(-M)}, & |x| \leq M \\ 0, & |x| > M \end{cases}$$

Čímž si zajistíme konečnost momentů. Od teď tedy budeme pracovat buď s případem, kdy $\frac{\gamma}{\sigma} \ll 1$ nebo budeme uvažovat $V_M(x)$.

Mějme nyní Gaussovské rozdělení centrované kolem nuly.

$$g(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp\left(-\frac{x^2}{2\sigma^2}\right).$$

Myšlenka zde spočívá v tom, že pro γ malé má Lorentzova distribuce

$$L(y, \gamma) = \frac{1}{\pi} \frac{\gamma}{y^2 + \gamma^2}$$

konverguje k δ -funkci pro $\gamma \rightarrow 0$.

Ukažme, že toto platí. Mějme Lorentzovu distribuci $L(x; \gamma)$ a testovací funkci $\phi(x)$. Pak

$$\lim_{\gamma \rightarrow 0} \int_{-\infty}^{\infty} L(x; \gamma) \phi(x) dx = \lim_{\gamma \rightarrow 0} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\pi} \frac{\gamma}{x^2 + \gamma^2} \phi(x) dx = \left| x = \gamma t, dx = \gamma dt \right| = \quad (3.1)$$

$$= \lim_{\gamma \rightarrow 0} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\pi} \frac{\gamma^2}{\gamma^2(t^2 + 1)} \phi(\gamma t) dt = \lim_{\gamma \rightarrow 0} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\pi} \frac{1}{t^2 + 1} \phi(\gamma t) dt = \quad (3.2)$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\pi} \frac{1}{t^2 + 1} \lim_{\gamma \rightarrow 0} \phi(\gamma t) dt = \phi(0) \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\pi} \frac{1}{t^2 + 1} dt = \phi(0) \cdot 1 = \delta(x) \quad (3.3)$$

přičemž limitu a integrál jsme mohli zaměnit, protože v integrálu máme integrabilní funkci (Lorentzovu distribuci) násobenou testovací funkcí (omezená).

Zapišeme nyní Voigtovu distribuci jako konvoluci.

$$V(x) = \int_{-\infty}^{\infty} g(x - y) L(y; \gamma) dy$$

Pokud tedy skutečně je $L(y; \gamma)$ blízko δ -funkci, tedy γ malé, zjevně platí

$$V(x) \approx g(x)$$

Ještě se pokusme odhadnout, jaké chyby se dopouštíme touto aproximací. Prozkoumáme charakteristickou funkci a člen patřící k Lorentzově distribuci rozvineme do Taylorovy řady.

$$\phi_V(t) = e^{-\sigma^2 t^2 / 2 - \gamma |t|} = e^{-\sigma^2 t^2 / 2} (1 - \gamma |t| + O(\gamma^2))$$

Aplikací inverzní Fourierovy transformace získáme

$$\begin{aligned} V(x) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-itx} \phi_V(t) dt = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-itx} [e^{-\sigma^2 t^2 / 2} - \gamma |t| e^{-\sigma^2 t^2 / 2} + O(\gamma^2)] dt = \\ &= \underbrace{\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-itx} e^{-\sigma^2 t^2 / 2} dt}_{(A)} - \gamma \underbrace{\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-itx} |t| e^{-\sigma^2 t^2 / 2} dt}_{(B)} + O(\gamma^2) \end{aligned}$$

přičemž integrál A je roven $g(x)$ a druhý integrál představuje korekci, označíme $\Delta(x)$. Ve výsledku tedy máme

$$V(x) = g(x) + \gamma \Delta(x) + O(\gamma^2), \quad (3.4)$$

kde korekční člen je

$$\Delta(x) = -\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-itx} |t| e^{-\sigma^2 t^2 / 2} dt. \quad (3.5)$$

Rozepišme nyní rozdíl mezi normálním rozdělením a Voigtovou distribucí

$$V(x) - g(x) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-itx} e^{-\sigma^2 t^2 / 2} (e^{-\gamma |t|} - 1) dt$$

V absolutní hodnotě, aplikací trojúhelníkové nerovnosti získáme

$$|V(x) - g(x)| \leq \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\sigma^2 t^2 / 2} |e^{-\gamma |t|} - 1| dt \leq \frac{\gamma}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} |t| e^{-\sigma^2 t^2 / 2} dt = \frac{\gamma}{\pi} \int_0^{\infty} t e^{-\sigma^2 t^2 / 2} dt,$$

kde druhá nerovnost vznikla odhadem $|e^{-\gamma|t|} - 1| \leq \gamma|t|$ a poslední rovnost plyne z faktu, že integrovaná funkce je sudá.

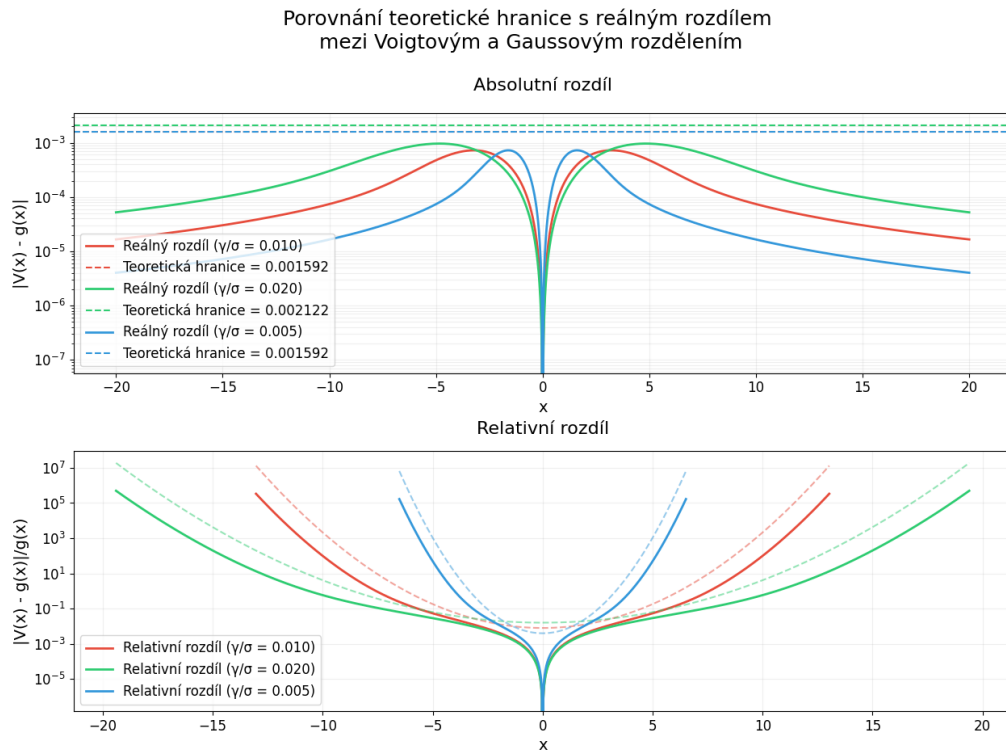
Zavedeme v posledním integrálu substituci $u = \frac{\sigma^2 t^2}{2}$ takže $du = \sigma^2 t dt$.

$$\int_0^\infty t e^{-\sigma^2 t^2/2} dt = \int_0^\infty \frac{e^{-u}}{\sigma^2} du = \frac{1}{\sigma^2}$$

Takže ve výsledku máme odhad

$$|V(x) - g(x)| \leq \frac{\gamma}{\pi\sigma^2}$$

Vyzkoušejme tento výsledek na pár rozděleních. Porovnejme rozdíl mezi Voigtovou a Gaussovou distribucí spolu s naším odhadem horní meze.



Obrázek 3.10: Srovnání absolutních a relativních rozdílů mezi Gaussovou a Voigtovou distribucí s teoretickou horní mezí.

Jak vidíme, rozdíl mezi Voigtovou a Gaussovou distribucí je minimální, pokud uvažujeme $\frac{\gamma}{\sigma}$ malé. Pokud vezmeme do úvahy fakt, že máme detektor s nízkým rozlišením a přítomný šum ve snímcích, můžeme tento rozdíl bezpečně zanedbat a pokračovat s fitováním normálního rozdělení do našich difrakčních vzorů.

Předpokládejme, že řádek našeho snímku v polárních souřadnicích se skládá z N pozorování $\{x_1, x_2, \dots, x_N\}$ a je výsledkem směsi s K Gaussovskými komponentami se střední hodnotou μ_k , rozptylem σ_k^2 a mixing koeficientem π_k . Pro jedno pozorování máme tedy

$$p(x; \{\pi_k, \mu_k, \sigma_k^2\}) = \sum_{k=1}^K \pi_k \mathcal{N}(x; \mu_k, \sigma_k^2)$$

a dále platí podmínky:

$$\sum_{k=1}^K \pi_k = 1, \pi_k \geq 0. \quad (3.6)$$

Naším cílem je nalézt $\{\pi_k, \mu_k, \sigma_k^2\}$, která maximalizují log-věrohodnost $\{x_i\}$. Zavedeme proměnnou $z_i \in \{1, \dots, K\}$ vyjadřující, která Gaussovská komponenta přísluší k x_i . Log-věrohodnost pro pozorování x_i a jeho příslušné z_i má tedy tvar:

$$\log p(x_i, z_i; \{\pi_k, \mu_k, \sigma_k^2\}) = \log [\pi_{z_i} \mathcal{N}(x_i; \mu_{z_i}, \sigma_{z_i}^2)]$$

a pro celý dataset:

$$\log p(X, Z; \{\pi_k, \mu_k, \sigma_k^2\}) = \sum_{i=1}^N \log [\pi_{z_i} \mathcal{N}(x_i; \mu_{z_i}, \sigma_{z_i}^2)].$$

Problémem je, že tuto log-věrohodnost nemůžeme maximalizovat přímo. V praxi se proto používá Expectation Maximization (EM) algoritmus. Definujeme

$$Q(\{\pi_k, \mu_k, \sigma_k^2\}) = \mathbb{E}_{Z|X}[\log p(X, Z)] = \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^K \gamma_{i,k} \log [\pi_k \mathcal{N}(x_i; \mu_k, \sigma_k^2)], \quad (3.7)$$

kde

$$\gamma_{i,k} = p(z_i = k | x_i) = \frac{\pi_k \mathcal{N}(x_i; \mu_k, \sigma_k^2)}{\sum_{j=1}^K \pi_j \mathcal{N}(x_i; \mu_j, \sigma_j^2)}.$$

Jedna iterace EM algoritmu se skládá ze dvou kroků. V prvním kroku (E-krok) aktualizujeme $\gamma_{i,k}$ a ve druhém kroku (M-krok) maximalizujeme výše definované Q vzhledem k $\{\pi_k, \mu_k, \sigma_k^2\}$ za podmínek 3.6. E-krok je přímočarý - jedná se o pouhé dosazení. Maximalizace 3.7. je o něco pracnější, byť ne složitá.

Začneme s π_k . Jediná část 3.7, která bude hrát roli je

$$Q_\pi = \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^K \gamma_{i,k} \log \pi_k$$

za podmínek 3.6. Bylo by možné namítat, že π_k se vyskytuje i v $\gamma_{i,k}$, ale tam už se jedná o číslo, nikoliv o proměnnou. Lagrangeián má tvar

$$\mathcal{L}(\{\pi_k\}, \lambda) = \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^K \gamma_{i,k} \log \pi_k + \lambda \left(1 - \sum_{k=1}^K \pi_k \right)$$

Derivaci položíme rovnou nule a vyjádříme π_k a dosadíme počáteční podmínku 3.6. Dostaneme:

$$\pi_k = \frac{1}{\lambda} \sum_{i=1}^N \gamma_{i,k}. \quad (3.8)$$

$$\sum_{k=1}^K \pi_k = \sum_{k=1}^K \frac{1}{\lambda} \sum_{i=1}^N \gamma_{i,k} = \frac{1}{\lambda} \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^K \gamma_{i,k} = \frac{1}{\lambda} \sum_{i=1}^N 1 = \frac{1}{\lambda} N = 1.$$

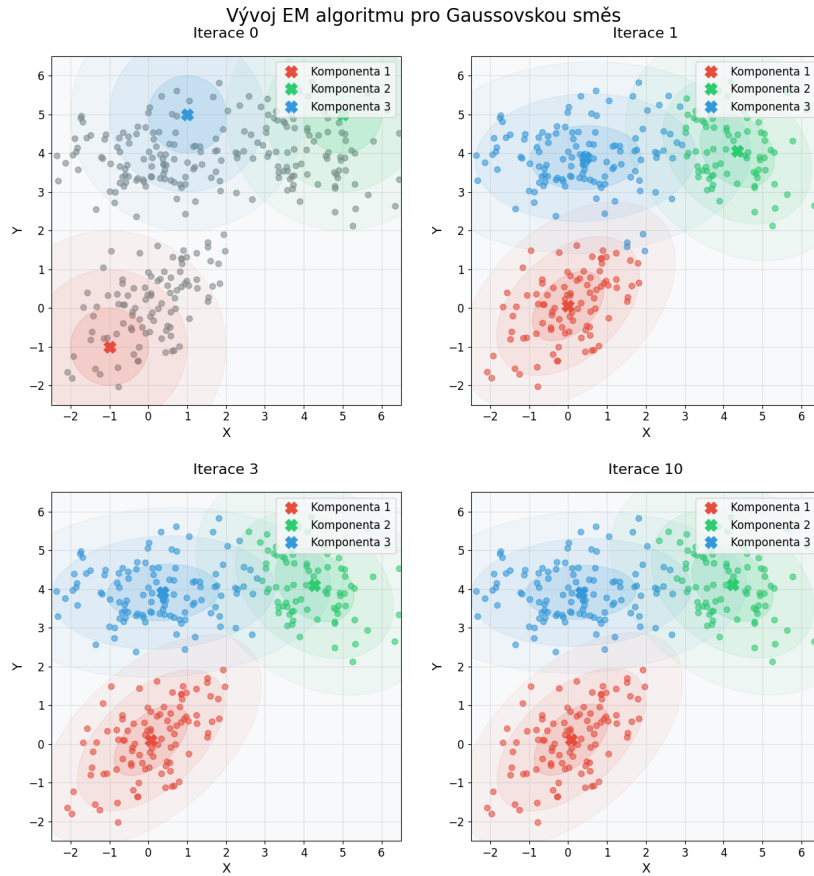
Takže finální tvar aktualizace π_k je:

$$\pi_k = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \gamma_{i,k} \quad (3.9)$$

Pro μ_k a σ_k^2 je situace podobná. Ve výsledku máme pro M-krok:

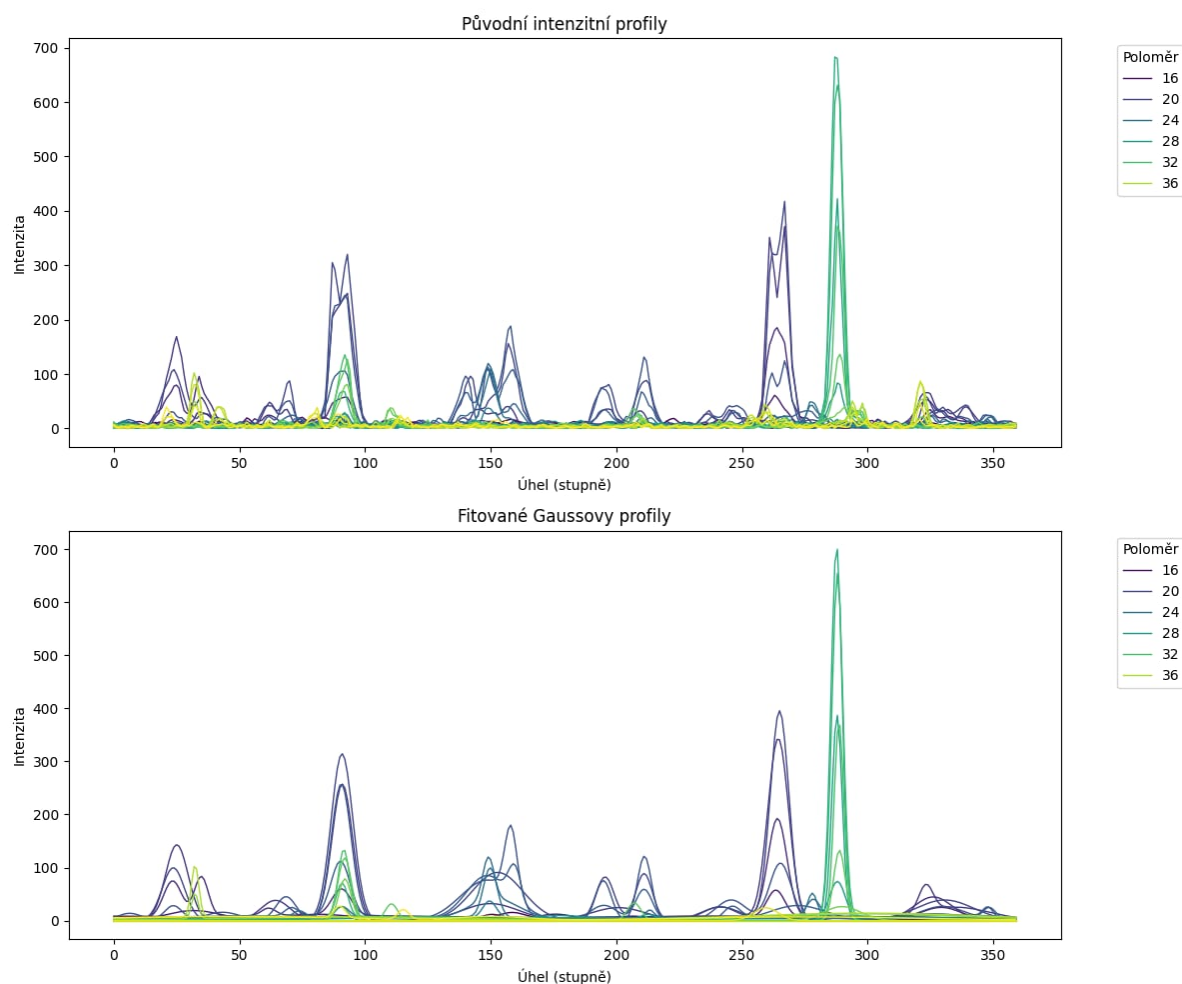
$$\pi_k = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \gamma_{i,k}, \quad \mu_k = \frac{\sum_{i=1}^N \gamma_{i,k} x_i}{\sum_{i=1}^N \gamma_{i,k}}, \quad \sigma_k^2 = \frac{\sum_{i=1}^N \gamma_{i,k} (x_i - \mu_k)^2}{\sum_{i=1}^N \gamma_{i,k}}$$

Ukažme si na jednoduchém příkladu, jak vypadá pár iterací EM algoritmu. Vygenerujme náhodné skupiny bodů z gaussovske směsi a pokusme se je nafitovat viz obr 3.11.



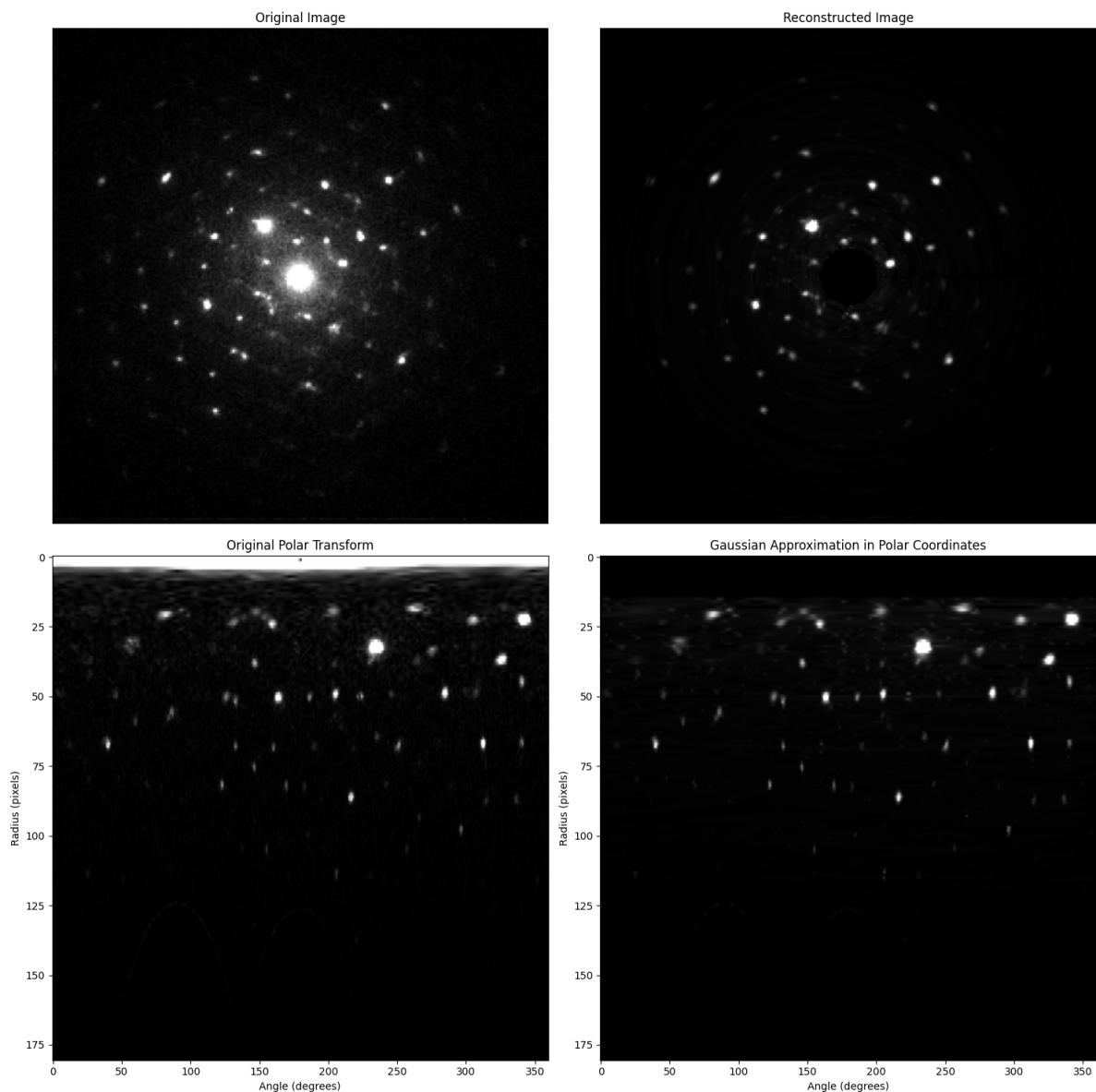
Obrázek 3.11: Ukázka fitování Gaussovské směsi za použití EM algoritmu na umělých datech.

Vraťme se teď k situaci z obrázku 3.8. Pokusme se do každého řádku snímku v polárních souřadnicích nafitovat Gaussovskou směs, přesamplovat z nafitované směsi nový snímek a ten převést zpět do kartézských souřadnic. Očekáváme od tohoto postupu odstranění šumu.



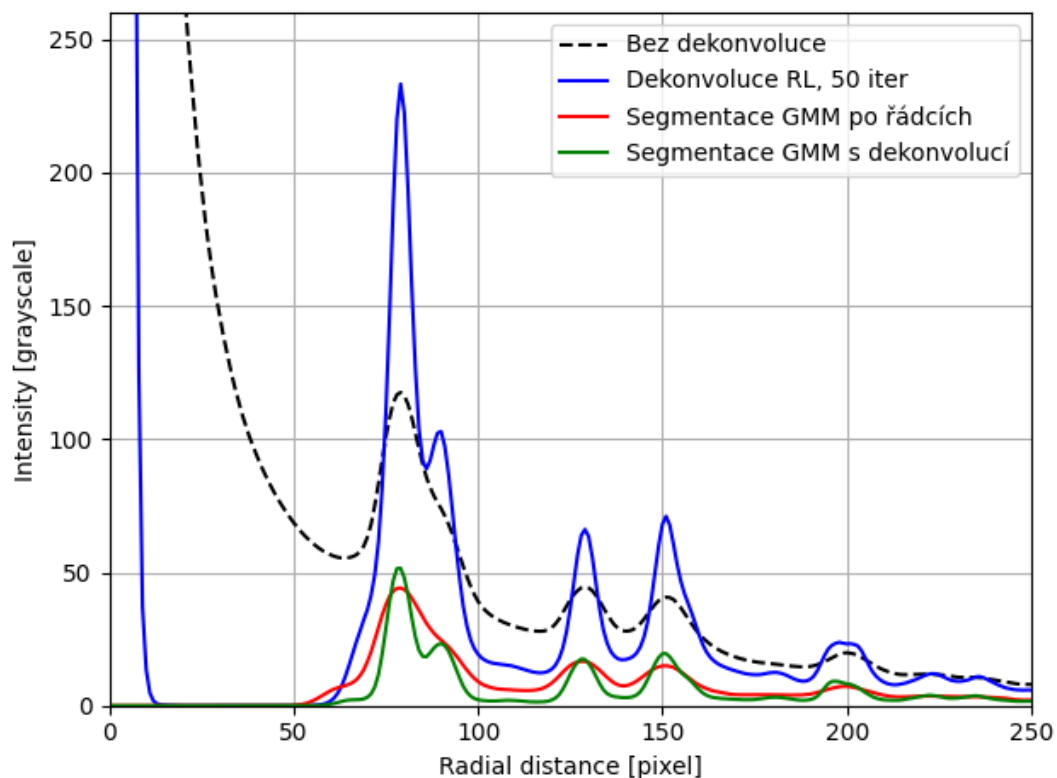
Obrázek 3.12: Ukázka fitování Gaussovske směsi do řádků difraktogramu v polárních souřadnicích.

Tento přístup funguje velmi dobře a efektivně odstraňuje šum. Z praktických důvodů jsme vynechali centrální maximum, protože pro nás nemá žádný význam. Zásadní nevýhoda této metody je časová náročnost. Fitování 256 Gaussovských směsí trvá dlouho, i přes různé pokusy o optimalizaci. Z tohoto důvodu vynecháváme řádky 100-256; difrakce takto daleko od středu jsou velmi nepravděpodobné. I přesto trvá rekonstrukce jednoho snímku kolem půl minuty. Jeden vzorek obsahuje stovky až tisíce snímků, a proto je tato metoda zpracování neefektivní.



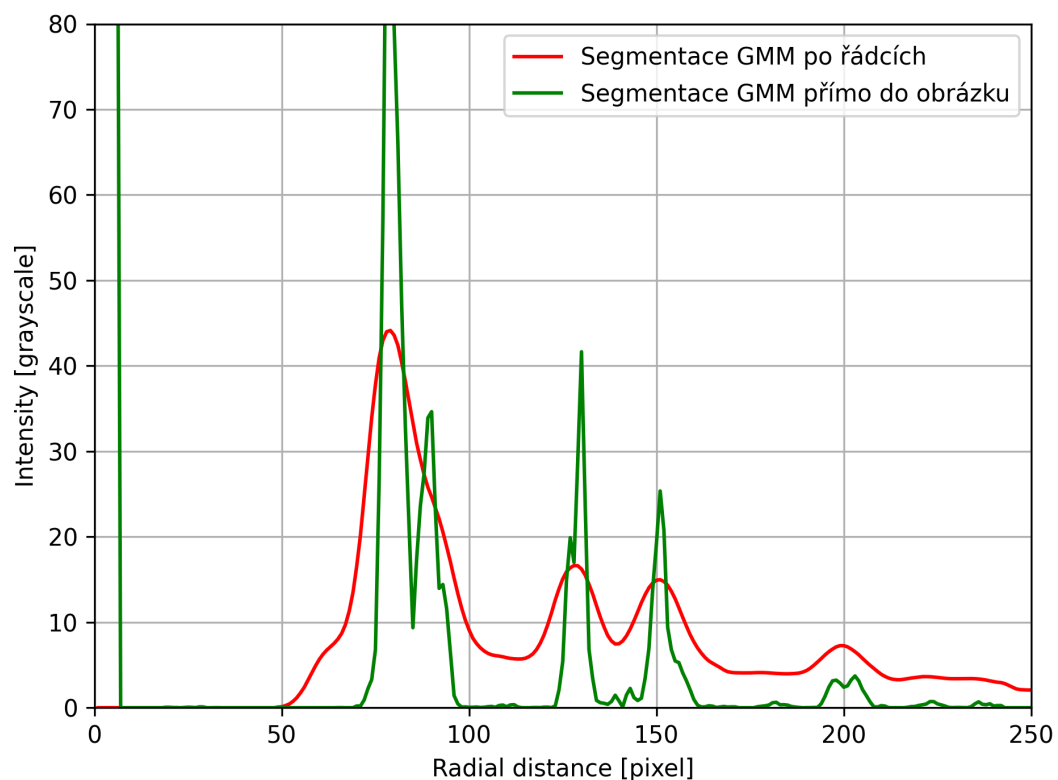
Obrázek 3.13: Ukázka rekonstrukce difraktogramu pomocí fitování Gaussovské směsi do řádků difraktogramu.

Přestože je tento přístup nepraktický, můžeme alespoň vyzkoušet, jak budou vypadat výsledné difraktogramy. Může nám to poskytnout náhled do vlivu šumu na samotné rekonstrukce. Stejně tak stojí za vyzkoušení aplikovat po rekonstrukci difraktogramů touto metodou dekonvoluci. Šum totiž tímto postupem prakticky odstraníme a vliv pozadí výrazně omezíme (byť se pozadí nepodaří odstranit kompletně). Vyzkoušejme na vzorku krystalů zlata, jak bude vypadat výsledný graf závislosti intenzity na vzdálenosti od středu pro rekonstrukce dekonvolucí, segmentací navrženou metodou a segmentací v kombinaci s dekonvolucí. Výsledek máme na obrázku 3.14.

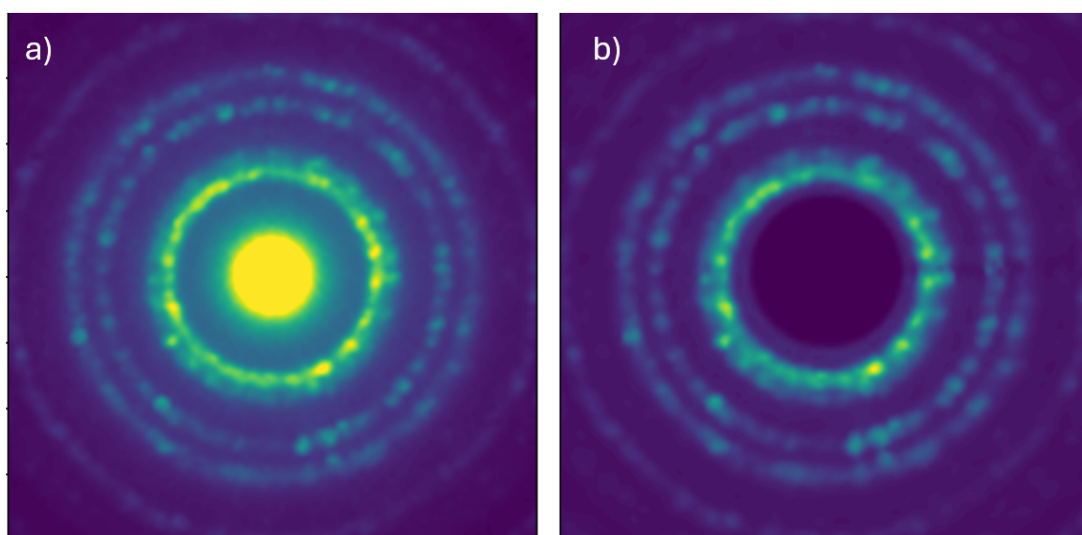


Obrázek 3.14: Porovnání profilu intenzity vzorku krystalů zlata pro rekonstrukce dekonvolucí, segmentací a segmentací s dekonvolucí.

Je zřejmé, že pozadí má v případě rekonstrukce daleko menší vliv, ovšem výsledná rekonstrukce se nezdá být zásadně lepší než při použití běžné dekonvoluce. Můžeme ještě porovnat předchozí metodu fitování Gaussovske směsi přímo do snímku s fitováním do jednotlivých řádků. Obrázek 3.15 demonstruje, že i když je navržená metoda zajímavá a pomáhá snižovat vliv pozadí a šumu, obyčejné fitování GMM do celého snímku dává nesrovnatelně lepší výsledky. Vizuálním porovnáním výsledných difraktogramů 3.16 také můžeme usoudit, že tato metoda segmentace nepřináší žádné zlepšení. Omezení šumu se zde neprojevuje, snímky průměrujeme a omezení vlivu pozadí není natolik významné, abychom získali lepší difraktogram. S ohledem na tato zjištění se nebudeme touto metodou dále zabývat.



Obrázek 3.15: Porovnání profilu intenzity vzorku krystalů zlata pro rekonstrukce fitováním do řádků pomocí GMM a fitováním GMM do celého snímku



Obrázek 3.16: Porovnání práškových difraktogramů vzorku zlata pouhým sečtením difraktogramů (a) a sečtením difraktogramů rekonstruovaných pomocí fitu GMM do jednotlivých řádků (b)

3.2 Prahování řádků v polárních souřadnicích

Předchozí metoda je příliš pomalá pro praktičtější použití, a ani na testovacím vzorku zlata nepřináší žádné zlepšení. Zkusíme se tedy vrátit k původní myšlence z [9] - vygenerujeme binární masku, spočteme těžiště každého nalezeného maxima a celkovou energii tohoto maxima uložíme do těžiště. Místo fitování Gaussovske směsi do každého řádku tentokrát budeme každý řádek prahovat. Jak naznačuje obrázek 3.8 - pouhá transformace do polárních souřadnic nás dostává do situace, kdy každý řádek má zhruba konstantní jas pozadí. Můžeme tedy oprahovat každý řádek a tím postupně řádek po řádku vygenerovat binární masku, kterou posléze jen přetransformujeme do kartézských souřadnic. Dále postupujeme stejně jako v případě fitování GMM do celého obrázku. Výhoda tohoto přístupu spočívá především v tom, že detekuje i slabší difrakční maxima. Stále je potřeba částečně masku vyčistit pomocí morfologických operací. Je třeba vyřadit špatné detekce, například v případech, kdy detekovaná oblast obsahuje jen několik málo pixelů.

Proces je tedy následující - snímek vycentrujeme a upscalujeme v souladu s ostatními procesy STEM-DIFF knihovny. Tím získáme snímek 1024×1024 . Začneme skenovat každý řádek, počínaje uživatelem definovaným řádkem. To proto, abychom nerekonstruovali centrální maximum, které pro nás nemá žádný přínos. Končíme také uživatelem definovaným řádkem, to proto, že difrakce v okrajích snímků jsou velmi vzácné; tímto omezením zrychlíme celý proces. K prahování využijeme MAD (Median Absolute Deviation) algoritmus. Ten je odolnější proti odlehlym pozorováním, která mohou být způsobena například vadným pixelem, nebo – což je pravděpodobnější v našem případě – některými maximy s velkou intenzitou.

Pro každý řádek snímku $X = (x_1, x_2, \dots, x_n)$, sestávající se z n pixelů, napočteme medián $m = \text{median}(X)$ a pro každý pixel napočteme $|x_i - m| \forall i \in \hat{n}$. Surovou hodnotu MAD prahu získáme jako medián těchto absolutních odchylek, tedy

$$MAD_{raw} = \text{median}(|x_1 - m|, |x_2 - m|, \dots, |x_n - m|).$$

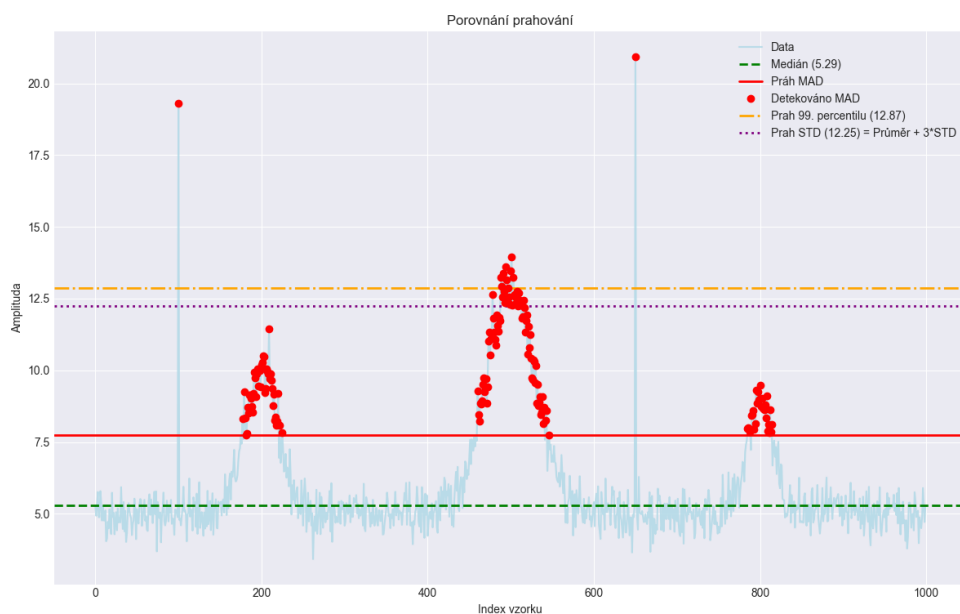
Tato hodnota se nadále škáluje,

$$MAD = k \times MAD_{raw},$$

kde jako k se typicky volí konstanta 1,4826. Tento faktor je odvozen tak, aby pro data z normálního rozdělení platilo, že očekávaná hodnota MAD se rovná směrodatné odchylce σ , konkrétně $k = \frac{1}{\Phi^{-1}(3/4)}$, kde Φ je kvantilová funkce standardního normálního rozdělení. Při prahování se MAD často používá k definování intervalu kolem mediánu, který zahrnuje "typická" data a tedy získáme práh P

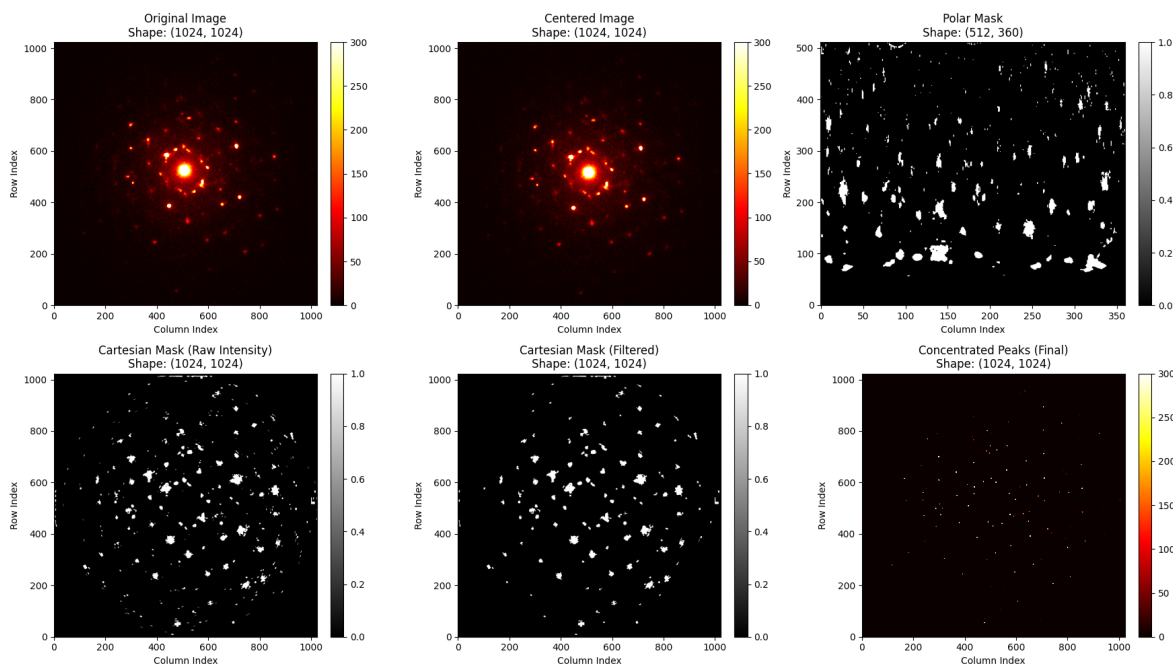
$$P = m + c \times MAD, \tag{3.10}$$

kde c je konstanta, typicky 3 (analogicky k pravidlu 3σ), kterou můžeme upravovat citlivost segmentace. Porovnání prahování umělého řádku pomocí MAD, percentilového prahu a prahu podle směrodatné odchylky je zobrazeno na obrázku 3.17.



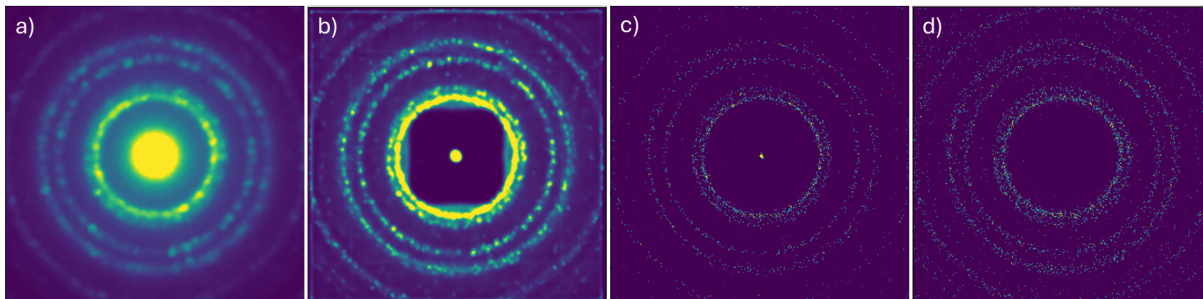
Obrázek 3.17: Ukázka MAD prahování ve srovnání s percentilovým prahováním a STD prahováním na umělých datech.

Vyzkoušejme tento přístup na testovacím vzorku zlata. Pro jeden difraktogram je proces segmentace, čištění masky a rekonstrukce difraktogramu shrnutý na obrázku 3.18.



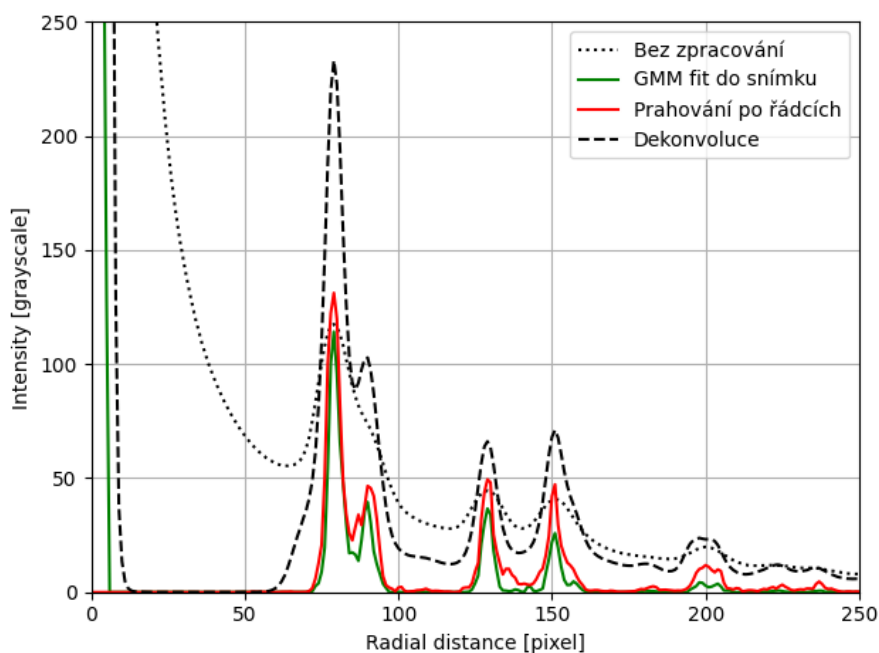
Obrázek 3.18: Shrnutí procesu segmentace difrakčního obrazce pomocí prahování řádků v polárních souřadnicích.

Zkusíme nyní pro účely testování vygenerovat práškový difraktogram touto metodou a porovnat s výsledkem získaným dekonvolucí a nejlepší metodou navrženou v [9], tedy fitováním GMM do snímku.

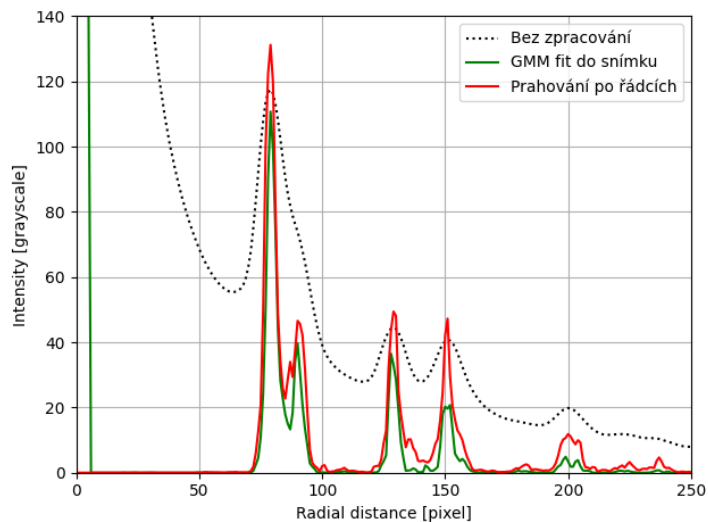


Obrázek 3.19: Srovnání práškových difraktogramů vzorku zlata získaných (a) součtem bez dalšího zpracování, (b) dekonvolucí difraktogramů Richardson-Lucyho algoritmem s 50 iteracemi, (c) fitováním GMM do difraktogramů, (d) segmentací řádků difraktogramu převedeného do polárních souřadnic.

Na první pohled vidíme na obrázku 3.19, že touto metodou zachytíme více difrakčních maxim a to i v odlehlejších částech snímku. Toto pozorování potvrzuje i profil intenzit na obrázcích 3.20 a pro lepší srovnání s dosavadní nejlepší metodou - tedy fitováním GMM do snímků na obrázku 3.21.

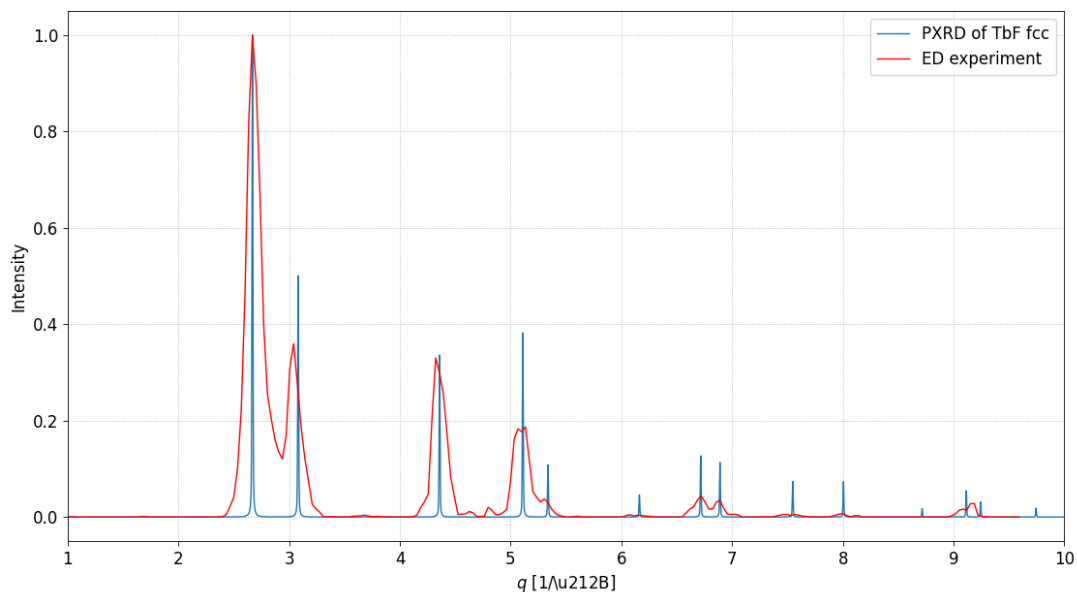


Obrázek 3.20: Srovnání profilu intenzit práškových difraktogramů získaných součtem bez dalšího zpracování, dekonvolucí, fitováním GMM do snímku a prahováním řádků difraktogramu převedeného do polárních souřadnic.

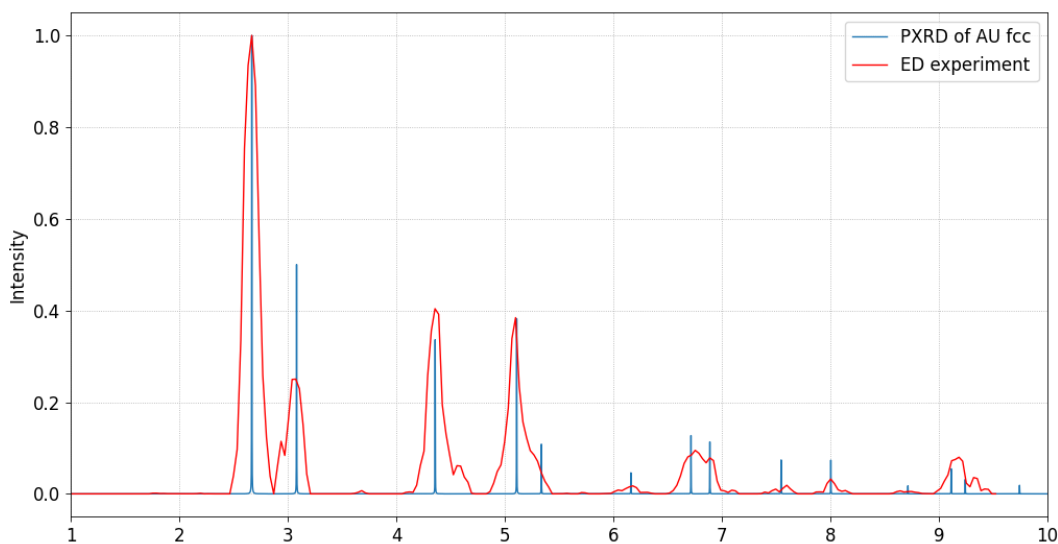


Obrázek 3.21: Srovnání profilu intenzit práškových difraktogramů získaných součtem bez dalšího zpracování, fitováním GMM do snímku a prahováním řádků difraktogramu převedeného do polárních souřadnic.

Důležitým přínosem tohoto postupu je lepší zachycení intenzity směrem k okrajům snímků – na rozdíl od fitování GMM získáváme vrcholy v profilu intenzit i ve vzdálenosti 230 pixelů od středu. Toto potvrzuje i srovnání s teoretickými profily intenzit. Z obrázků 3.22 a 3.23 vidíme, že touto metodou zachytíme difrakční obrazec výrazně lépe. Je potřeba brát v úvahu, že vzorek zlata používáme jen jako testovací. Otázkou zůstává, jak dobře tato metoda bude fungovat se vzorky, které hůře difraktují elektrony. Této otázce se budeme detailněji věnovat v experimentální části.

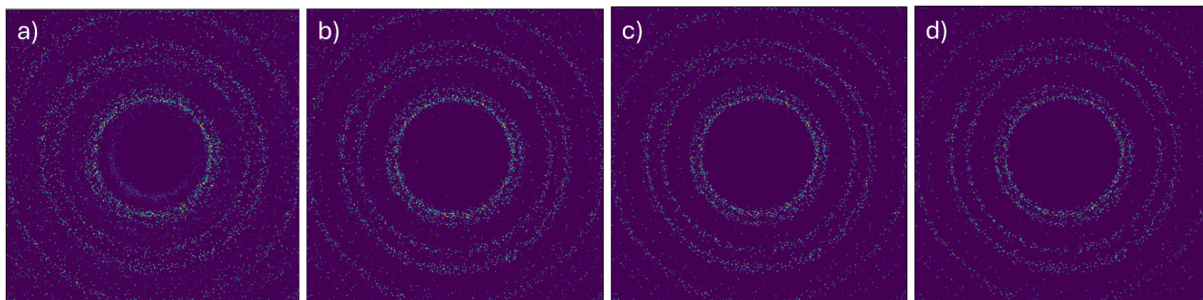


Obrázek 3.22: Srovnání profilu intenzit s teoretickými hodnotami pro vzorek krystalu zlata. Difraktogram získaný fitováním GMM do snímku.

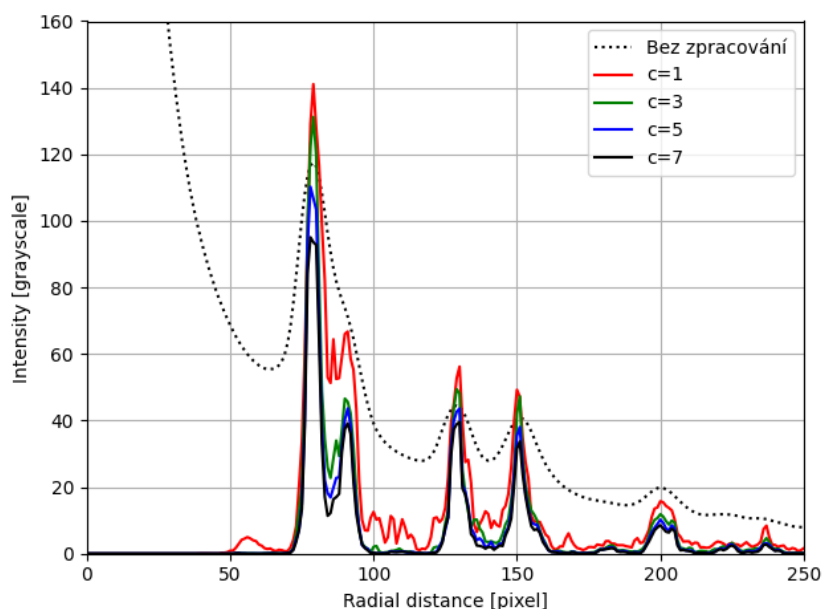


Obrázek 3.23: Srovnání profilu intenzit s teoretickými hodnotami pro vzorek krystalu zlata. Difraktogram získaný prahováním řádků v polárních souřadnicích.

Dále stojí za vyzkoušení jaký vliv má konstanta c v definici prahu 3.10. Vygenerujme sérii difraktogramů s různými hodnotami c . Výsledky jsou na obrázcích 3.24 a 3.25. Vidíme, že pro nízké hodnoty konstanty c detekujeme velké množství šumu jako peaky. Tento efekt je částečně potlačen morfologickým čištěním masky. Stejně tak při vysokých hodnotách nedetekujeme některé difrakční peaky a přicházíme tak o část informace.



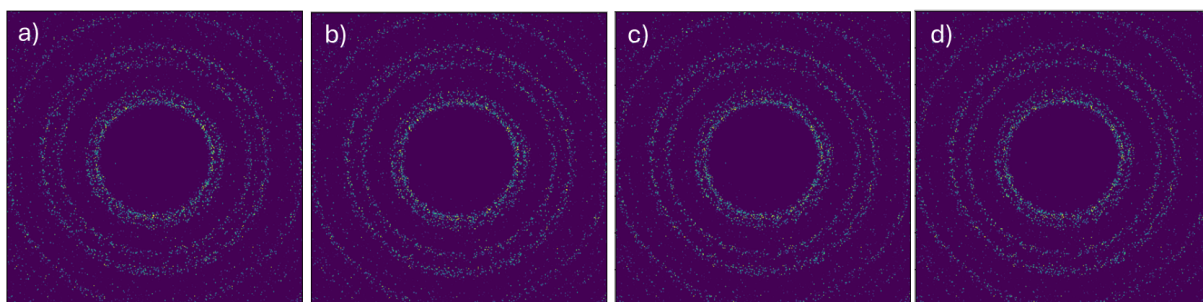
Obrázek 3.24: Srovnání práškových difraktogramů vzorku zlata, vygenerovaných segmentací jednotlivých řádků pomocí MAD algoritmu, pro konstanty (a) $c=1$, (b) $c=3$, (c) $c=5$, (d) $c=7$



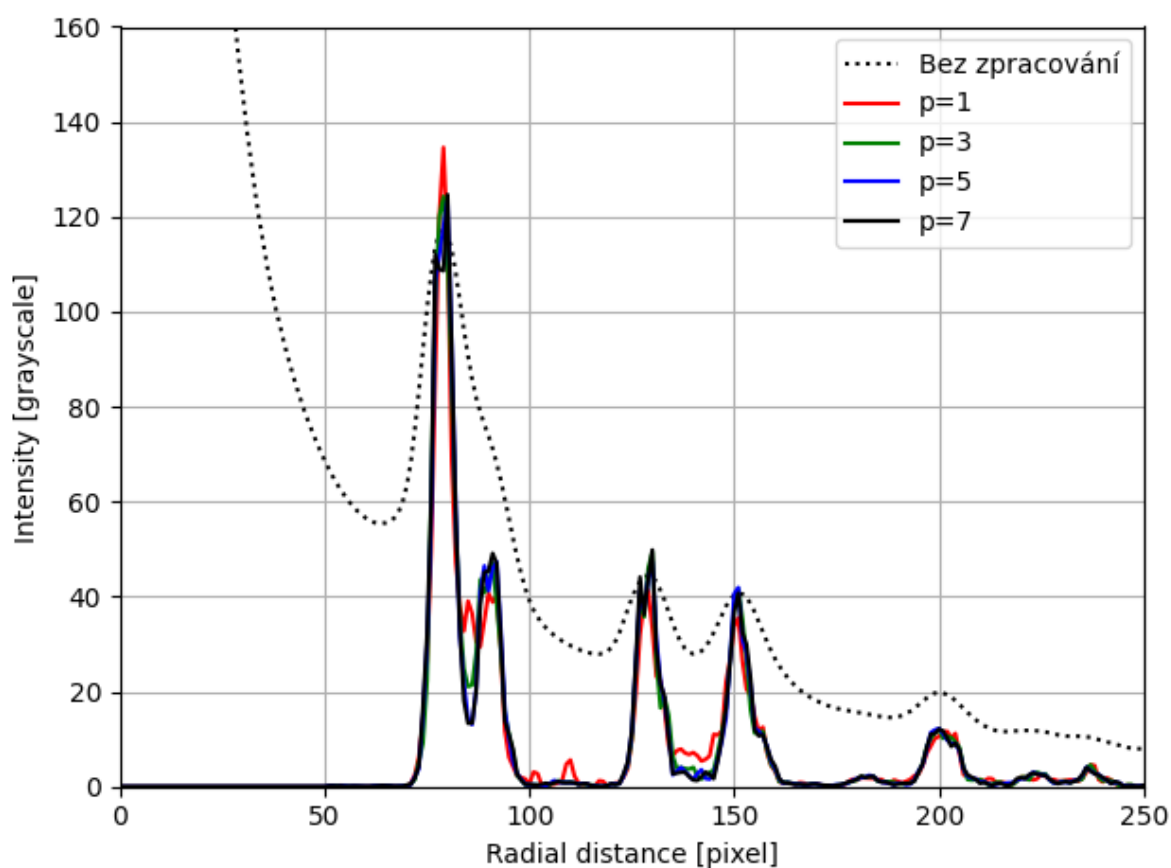
Obrázek 3.25: Profil intenzit pro různé hodnoty konstanty c pro difraktogram vzorku krystalů zlata.

V tomto případě se jeví $c = 3$ jako rozumná volba, pro jiné vzorky bude potřeba experimentovat s volbou této konstanty kvůli různým úrovním šumu a jasu pozadí.

Do této metody jsme také naimplementovali jednu modifikaci pro výpočet polohy maxima v rekonstruovaném difraktogramu. Určit polohu přesně je naprosto zásadní a v budoucnu by bylo vhodné modifikovat knihovnu STEMDIFF tak, aby rekonstrukce profilu intenzit fungovala v $\mathbb{R}^+$, nikoliv se snažit rekonstruovat diskretní snímek. Prozatím jsme se pokusili zpřesnit lokalizaci maxim jednoduchým trikem. Namísto toho, abychom při výpočtu těžiště každého peaku vážili pixely pouze jejich intenzitou I , vážíme je mocněnou intenzitou I^p , $p \geq 1$. V praxi tedy při volbě například $p = 2$ budou mít jasné pixely 4x větší váhu než pixely s poloviční intenzitou. Volba p je opět poněkud arbitrární a je potřeba experimentovat s každým vzorkem samostatně. Znovu zkusíme vygenerovat difraktogram pro různá p .

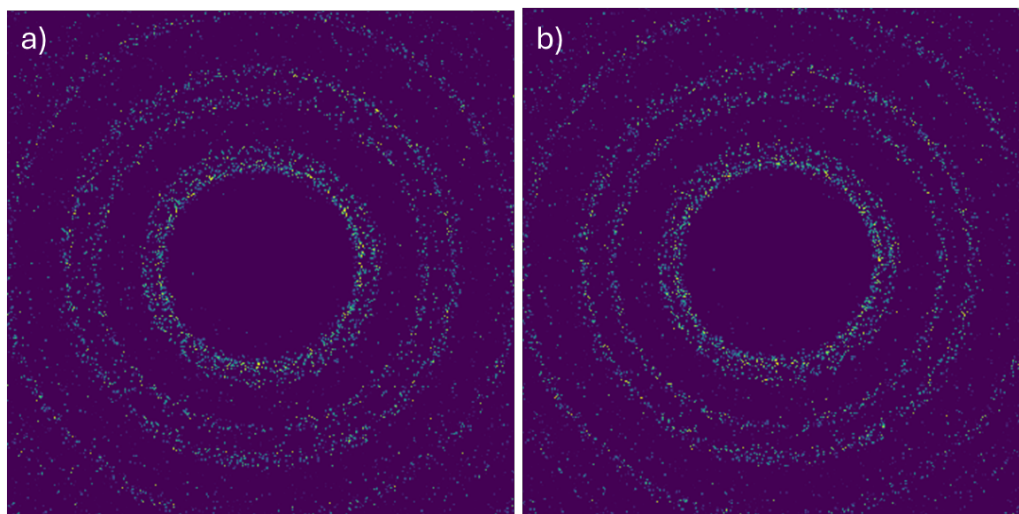


Obrázek 3.26: Srovnání práškových difraktogramů vzorku krystalu zlata, vygenerovaných prahováním snímků v polárních souřadnicích, porovnání pro různé mocniny p použité pro vážení intenzity pixelů, (a) $p=1$, (b) $p=3$, (c) $p=5$, (d) $p=7$.



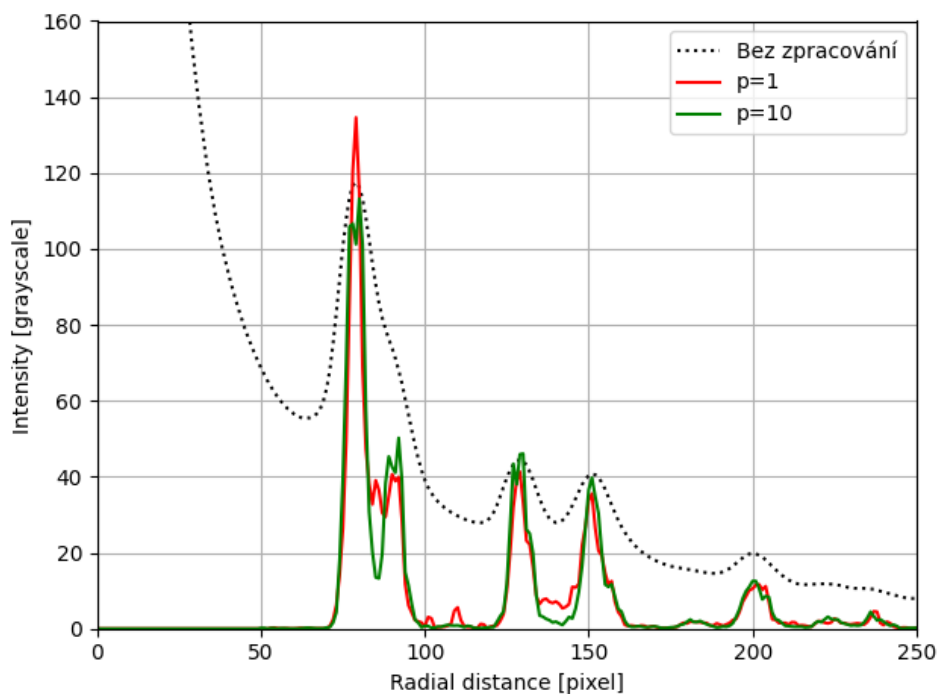
Obrázek 3.27: Srovnání profilu intenzit práškových difraktogramů vzorku krystalu zlata, vygenerovaných prahováním snímků v polárních souřadnicích a porovnání pro různé mocniny p použité pro vážení intenzity pixelů.

Vizuální změny na obrázku 3.26 jsou minimální, stejně tak změny v profilu intenzit na obrázku 3.27 jsou jen těžko rozpoznatelné. To není překvapení, úprava lokalizace maxim bude jen malá, ovšem při podrobnějším přezkoumání výsledku má toto vážení intenzity požadovaný efekt. Podívejme se pouze na případy $p = 1$ a $p = 10$.



Obrázek 3.28: Srovnání práškových difraktogramů vzorku krystalu zlata, vygenerovaných prahováním snímků v polárních souřadnicích, porovnání pro různé mocniny p použité pro vážení intenzity pixelů, (a) $p=1$, (b) $p=10$.

Z obrázku 3.28 je patrné, že prostor mezi charakteristickými kružnicemi práškového difraktogramu se trochu vyčistil, čímž došlo k jejich lepšímu oddělení. Tento efekt je lépe patrný v profilu intenzit na obrázku 3.29.



Obrázek 3.29: Srovnání profilu intenzit práškových difraktogramů vzorku krystalu zlata, vygenerovaných prahováním snímků v polárních souřadnicích, porovnání pro různé mocniny p použité při vážení intenzity pixelů.

Tato metoda má jednu další velkou výhodu - je rychlá. Celá segmentace je výpočetně nenáročná, na našem hardwaru jsme zvládali rekonstruovat 4 snímky za sekundu, u fitování GMM přímo do snímku je rychlost zhruba 1 snímek za sekundu. Nevýhoda je samotné použití. Je potřeba zkoušet různá nastavení parametrů, pro dosažení optimálního výsledku.

3.3 Blob detektory a ošetření jasu pozadí

Jako další myšlenku pro detekci maxim zkusíme využít blob detektory. Formálně je blob ve zpracování obrazu oblast snímku, která se svými vlastnostmi liší od svého okolí. V kontextu našich dat jde o hledání peaků. Do knihovny STEMDIFF naimplementujeme jeden z nejpoužívanějších detektorů blobů, Laplacian of Gaussian (LoG). Máme i jiné možnosti, jako například Difference of Gaussians (DoG), nebo modernější Maximally Stable Extremal Regions (MSER). Volíme však LoG, protože jeho použití je jednoduché, detekce je rychlá a zároveň získáme i rozptýl jednotlivých peaků - můžeme tedy sečíst intenzitu ve vzdálenosti 3σ od středu nalezeného maxima, čímž zachytíme většinu energie každého maxima. Ve snaze zlepšit samotnou detekci se pokusíme také ošetřit jas pozadí.

V tomto směru máme také hned několik možností. STEMDIFF používá pro vyrovnaní pozadí metodu rolling ball [20]. My jsme dříve uvedli předpoklad, že naše snímky mají symetrické Gaussovské pozadí. Pozadí bychom mohli modelovat pomocí normálního rozdělení a následně jej odečíst. Problém je, že tato úvaha nemusí fungovat univerzálně - u některých vzorků pozadí nemusí být symetrické normální rozdělení. Jinou zajímavou možností je použít morfologické operace - konkrétně opening [21]. Tím se budeme zabývat zde. Tato volba je opět řízená jednoduchostí a rychlostí.

Celý proces bude fungovat podobně, jako v předchozí sekci. Snímek vycentrujeme a odhadneme jas pozadí, poté snímek přeškálujeme pro další použití knihovnou STEMDIFF. Důvod proč odhadujeme pozadí před škálováním je daný výpočetní náročností. Morfologické operace trvají pro velké snímky a velké strukturní elementy dlouho. Celý proces se značně urychlí, když provedeme odhad pozadí před škálováním. Po odečtení pozadí nadetekujeme maxima pomocí LoG. Zbylé kroky, tedy určení těžiště každého peaku a koncentrace intenzit do tohoto těžiště fungují stejně jako v předchozí sekci.

Jak jsme naznačili, pro odhad jasu pozadí využijeme operaci opening, což je operace eroze následovaná dilatací. Eroze je morfologická operace definovaná jako

$$(f \ominus B)(x) = \inf_{b \in B} f(x + b),$$

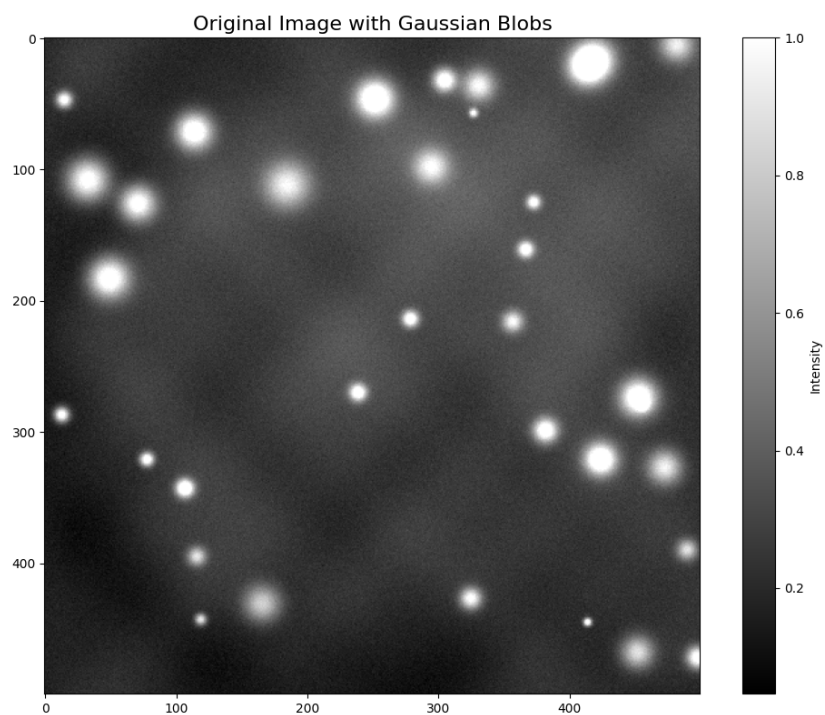
kde B představuje strukturní element, typicky disk. Erozí odstraníme detaily snímku menší, než je strukturní element. V praxi tedy budeme chtít nastavit takovou velikost B , aby byl větší než největší očekávaná maxima v difraktogramech. Dilatace je další morfologická operace definovaná jako

$$(f \oplus B)(x) = \sup_{b \in B} f(x - b).$$

Kombinací těchto operací získáme odhad jasu pozadí jako

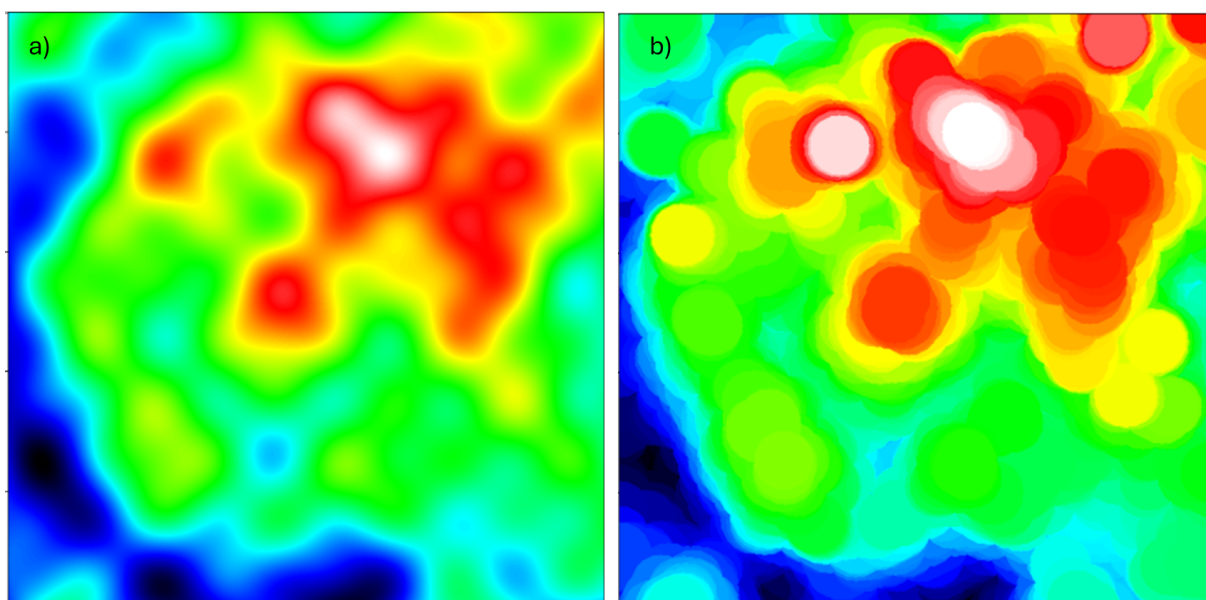
$$g(x) = (f \ominus B) \oplus B = (f \circ B)(x),$$

kde $\circ$ značí opening. Demonstrujme tento postup odhadu jasu pozadí na ukázkovém příkladu. Vygenerujeme si snímek s náhodnými Gaussovskými bloby, Gaussovským pozadím a přičtíme k pozadí mix goniometrických funkcí, abychom získali netriviální multimodální pozadí. Vygenerovaný snímek vypadá následovně (obr. 3.30).



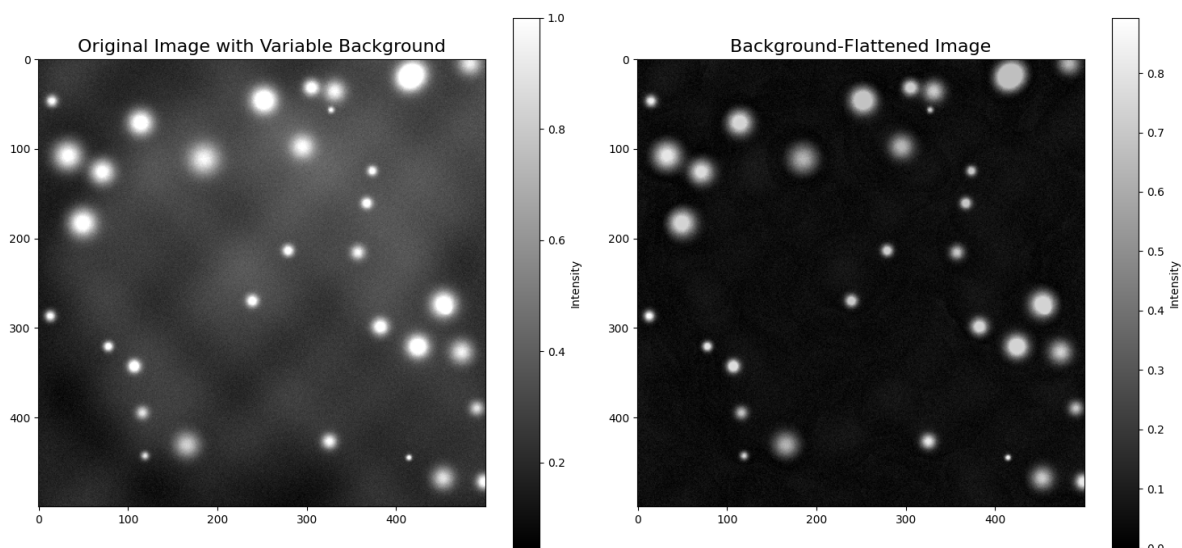
Obrázek 3.30: Snímek s Gaussovskými bloby a neuniformním pozadím pro demonstraci odhadu jasu pozadí.

Srovnajme nyní na obrázku 3.31 originální pozadí použité k vygenerování snímku a odhad získaný pomocí openingu.



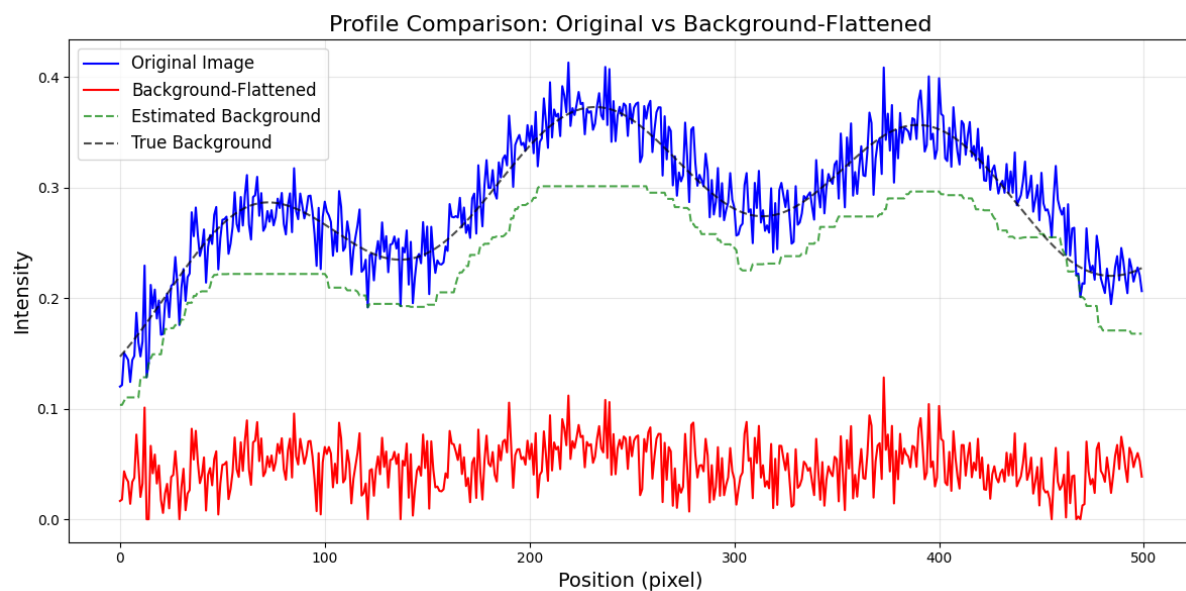
Obrázek 3.31: Srovnání (a) originálního a (b) odhadnutého pozadí.

Odhad touto metodou vychází velmi dobře. Efekt odečtení pozadí snímku je patrný na obrázku 3.32.



Obrázek 3.32: Srovnání originálního snímku se snímkem po odečtení pozadí odhadnutého pomocí morfologie.

Ještě patrnější je tento efekt vyrovnaní jasu, když si vykreslíme intenzitu jednoho řádku snímku před a po odečtení pozadí.



Obrázek 3.33: Graf intenzity jednoho řádku snímku před a po odečtení odhadnutého pozadí.

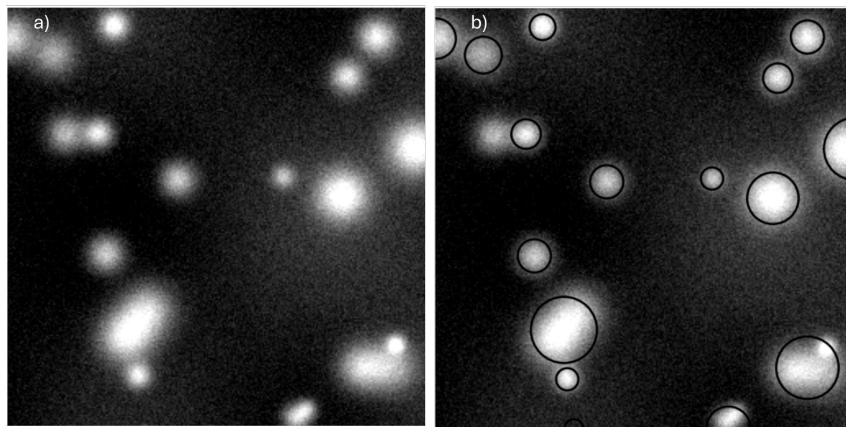
Po odečtení pozadí aplikujeme LoG detektor. Spočítáme konvoluci našeho snímku s Gaussovským jádrem, tedy

$$L(x, y, \sigma) = G(\cdot, \cdot, \sigma) * I(x, y)$$

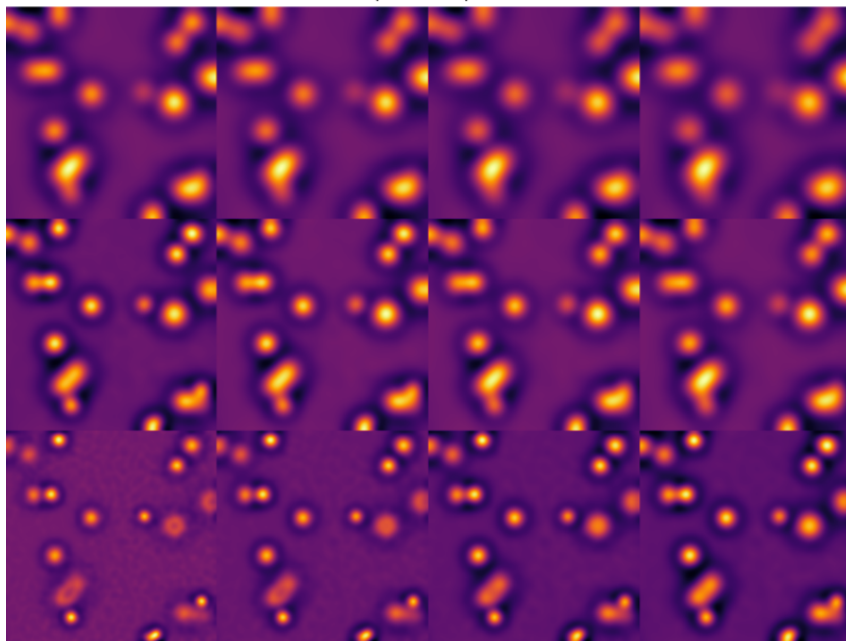
a poté aplikujeme Laplaceův operátor

$$\mathcal{L}(x, y, \sigma) = \sigma^2 \nabla^2 L(x, y, \sigma).$$

Přenásobení rozptylem je zde záměrně. My nebudeme hledat maxima pouze jedné velikosti, ale zkonstruujeme tzv. měřítkový prostor [22]. Vybereme několik Gaussovských jader s různými rozptyly a budeme hledat maximum Laplaceova operátoru aplikovaného na konvoluci v tomto měřítkovém prostoru. Pro lepší představu - na obrázku 3.34 je zobrazena detekce Gaussovských peaků pomocí LoG detektoru a na obrázku 3.35 je zobrazen LoG pro všechny volené rozptyly. Volba rozptylů je určena uživatelem, je tedy potřeba v praxi experimentovat. V kontextu difrakce dává smysl volit maximální rozptyl o něco větší, než je očekávaná velikost největších peaků ve snímku.

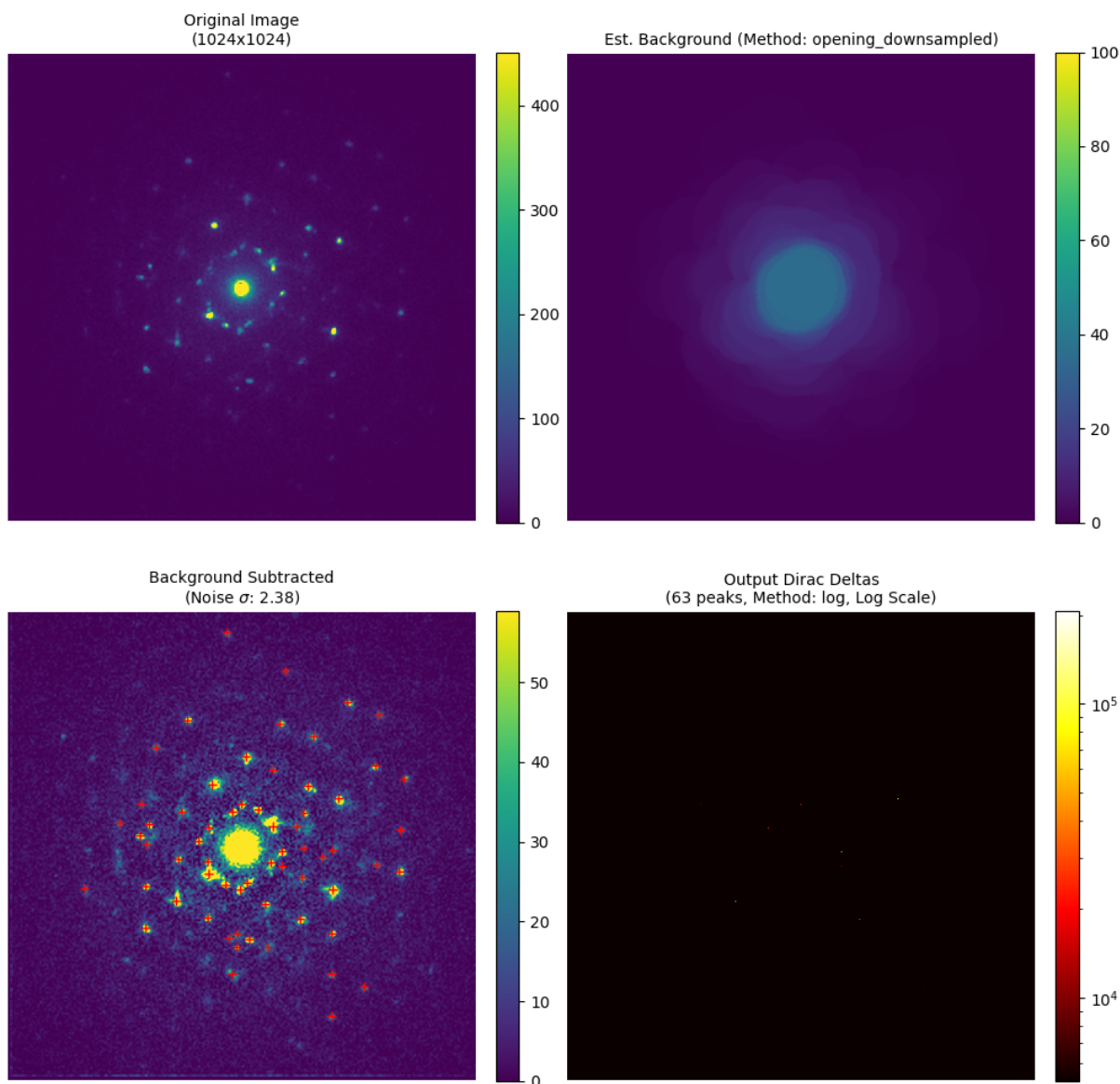


Obrázek 3.34: Demonstrace detekce Gaussovských peaků pomocí LoG detektoru



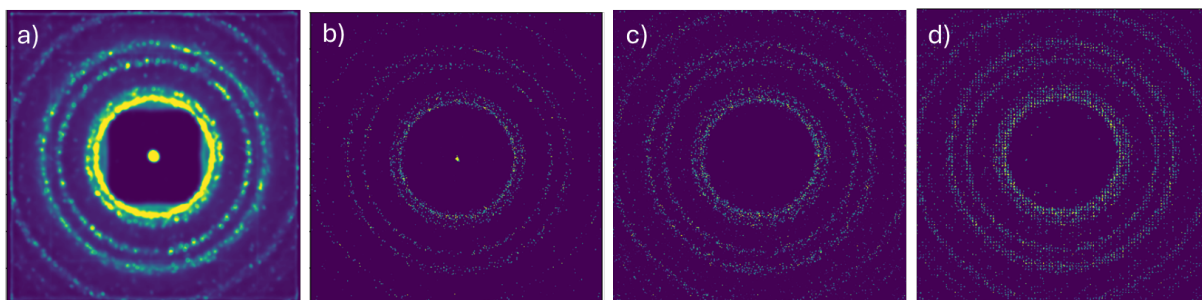
Obrázek 3.35: LoG detektor pro volby rozptylů $\sigma = 4$ až $\sigma = 15$.

Vyzkoušejme tento přístup k detekci opět na testovacím vzorku zlata. Jak je patrné z obrázku 3.36 a z předchozího obrázku 3.34, některá maxima se nepodařilo nalézt. To však nemusí představovat zásadní problém, pokud jsou nalezeny peaky v různých vzdálenostech od středu – i v takovém případě totiž po sečtení všech difraktogramů získáme charakteristické soustředné kružnice.

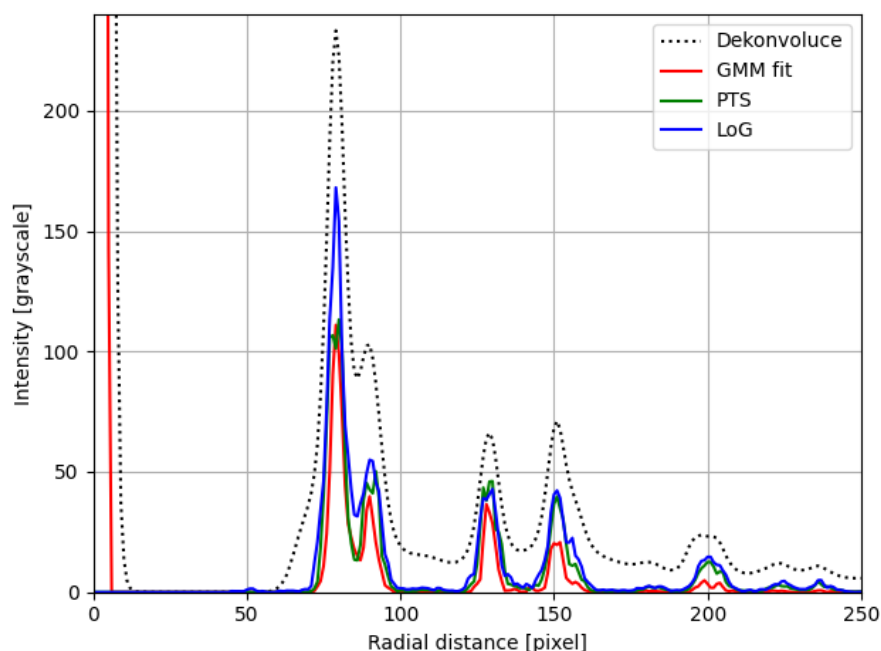


Obrázek 3.36: Ukázka detekce maxim pomocí LoG detektoru na difraktogramu vzorku krystalu zlata.

Vygenerujme nyní tedy práškový difraktogram a porovnejme výsledky s předchozí navrženou metodou segmentace, s dekonvolucí a s metodou navrhanou v [9]. Samotné práškové difraktogramy máme na obrázku 3.37, profil intenzit poté na obrázku 3.38.

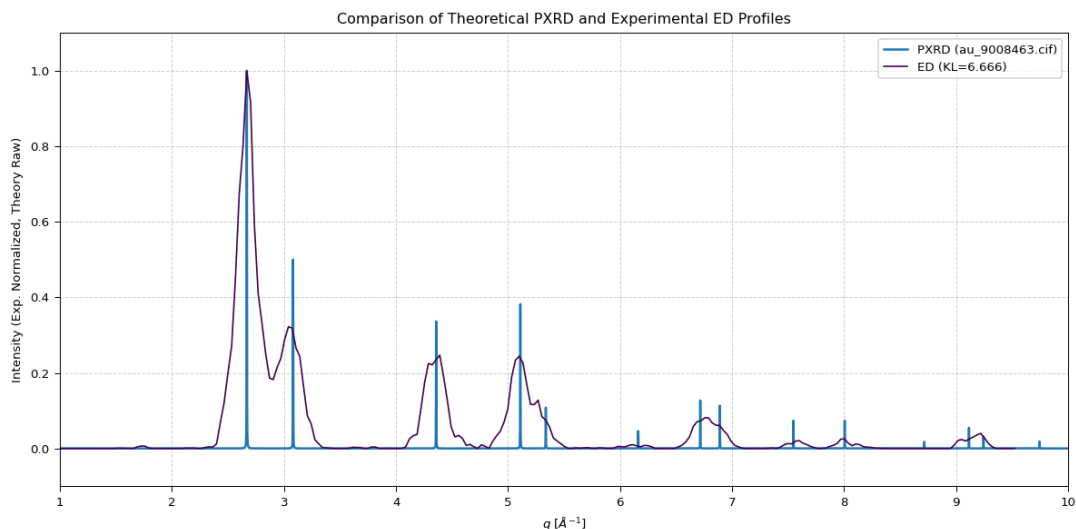


Obrázek 3.37: Srovnání práškových difraktogramů vzorku krystalu zlata získaných (a) dekonvolucí, (b) fitováním GMM do snímku, (c) prahováním po řádcích, (d) LoG detektorem.



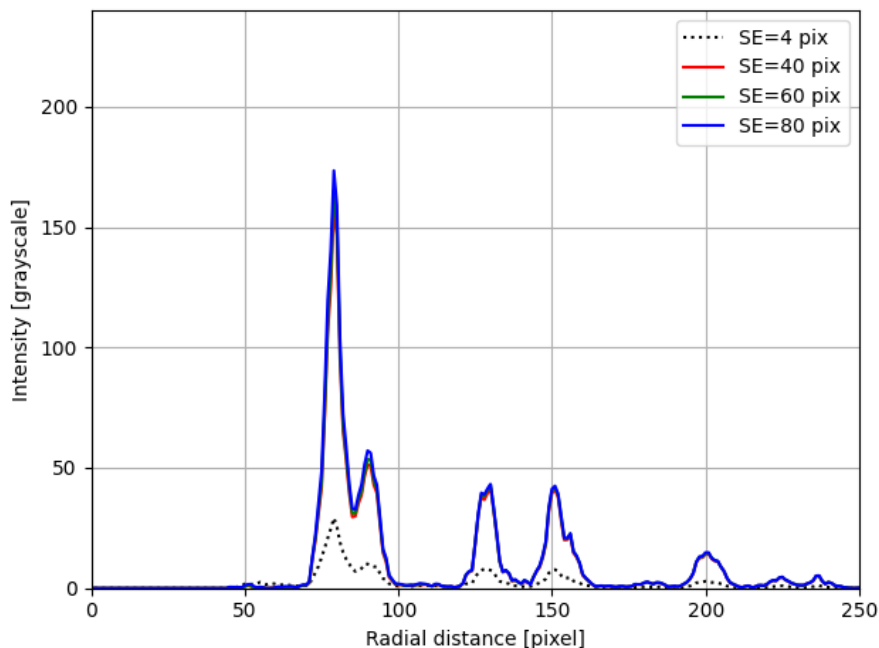
Obrázek 3.38: Srovnání profilu intenzit pro práškové difraktogramy získané dekonvolucí, fitováním GMM, prahováním a LoG detektorem.

Vidíme, že obě navrhované metody podávají podobné výsledky. Důležité pro nás je, že obě metody na tomto testovacím vzorku překonávají dosud nejlepší metodu fitování Gaussovske směsi. Nejlépe je toto zlepšení vidět v odlehlejších částech snímku, kde zachycujeme peaky i tam, kde fitování GMM nestačí. Porovnejme ještě výsledek s teoretickým profilem intenzit 3.39.



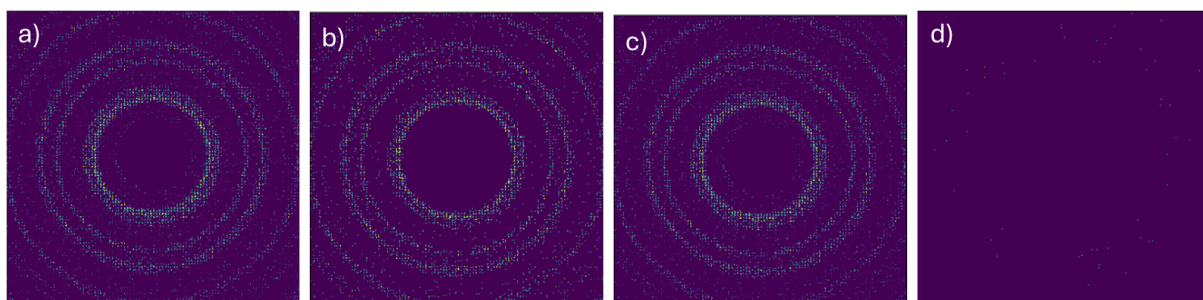
Obrázek 3.39: Srovnání teoretického profilu s profilem získaným z práškového difraktogramu vygenerovaného LoG detektorem.

Stejně jako v předchozím případě, i zde jsou uživatelsky definované parametry, které ovlivňují kvalitu rekonstrukce. Vzhledem k tomu, že pozadí odečítáme pomocí morfologických operací, jedním z uživatelských parametrů je velikost strukturního elementu. Dalšími parametry pro LoG detektor jsou rozsah rozptylů pro vytvoření měřítkového prostoru a jemnost dělení tohoto intervalu. Podívejme se na vliv jednotlivých parametrů na profil intenzity. Nejprve se zaměříme na vliv velikosti strukturního elementu. Úmyslně zvolíme pro jeden z grafů i strukturní element, který je příliš malý.

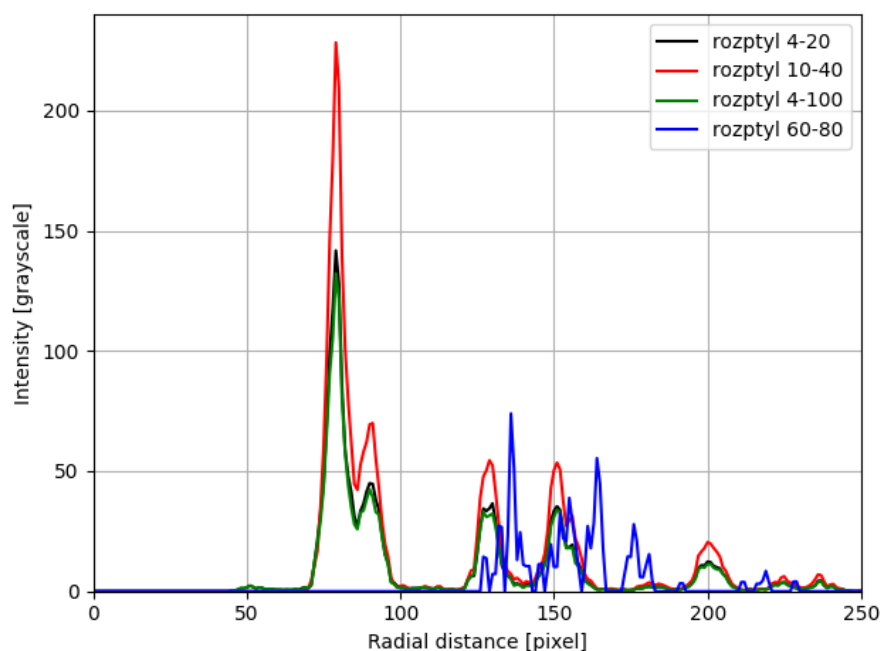


Obrázek 3.40: Porovnání vlivu velikosti strukturního elementu na profil intenzity.

Na obrázku 3.40 vidíme, že velikost strukturního elementu nemá na výsledný profil příliš velký vliv, pokud ovšem nezvolíme příliš malý strukturní element. V takovém případě začneme odečítat difrakční maxima samotná. Dále zkusme různé rozsahy rozptylů použitých při konstrukci měřítkového prostoru. Vyberme 4 různé rozsahy - $\sigma \in (4, 10)$, $\sigma \in (60, 80)$, $\sigma \in (4, 100)$ a $\sigma \in (4, 20)$. Máme tedy malé rozsahy s malými i velkými rozptyly, jeden velký rozsah a jeden arbitrárně zvolený na základě vizuální prohlídky dat.

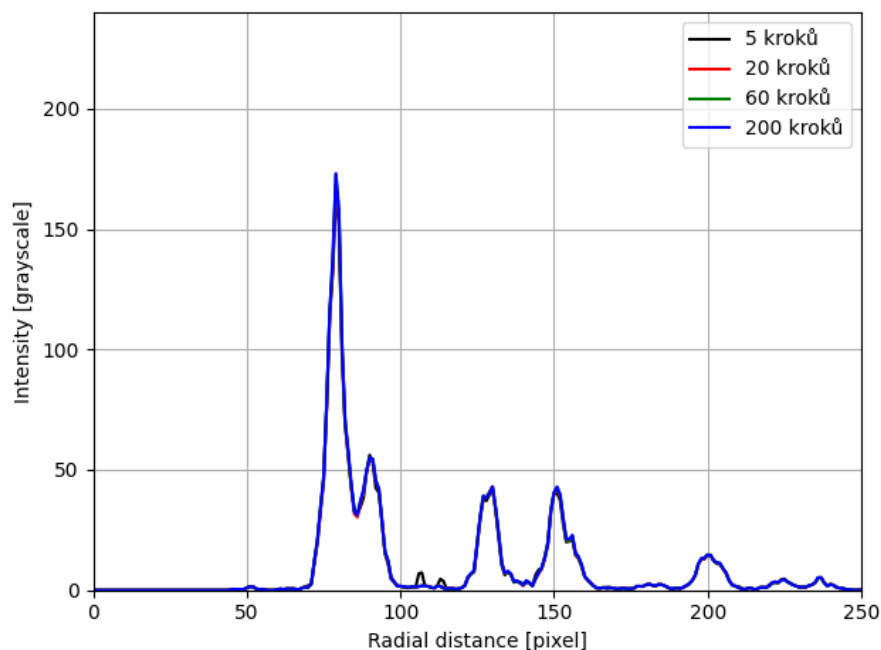


Obrázek 3.41: Srovnání práškových difraktogramů vzorku krystalů zlata získaných LoG detektorem s nastavením rozptylů (a) 4-20 pixelů, (b) 10-40 pixelů, (c) 4-100 pixelů, (d) 60-80 pixelů.



Obrázek 3.42: Srovnání profilů intenzit práškových difraktogramů vzorku zlata získaných LoG detektorem pro různé rozsahy rozptylu.

Jak vidíme z obrázků 3.41 a 3.42, volba rozsahu může ovlivnit výsledky – zejména pokud se hledaná maxima velikostí nacházejí mimo tento rozsah. Ještě se podívejme, jestli má jemnost dělení rozsahu rozptylů zásadnější vliv. Volíme rozptyl 10 až 40 pixelů; v profilu intenzit výše je patrné, že pro tento rozsah bylo zachyceno nejvíce peaků.



Obrázek 3.43: Srovnání profilu intenzit práškového difraktogramu vzorku krystalu zlata získaného LoG detektorem pro různé jemnosti dělení rozsahu rozptylů.

Z obrázku 3.43 se zdá, že samotná jemnost dělení intervalu rozptylů nemá velký vliv na výsledný difraktogram.

I tato metoda podává zajímavé výsledky na testovacím vzorku zlata. Komplikovanější vzorky prozkoumáme v experimentální části, ovšem stojí za zmínku, že i tato metoda je zhruba 2x rychlejší než fitování Gaussovské směsi přímo do snímků.

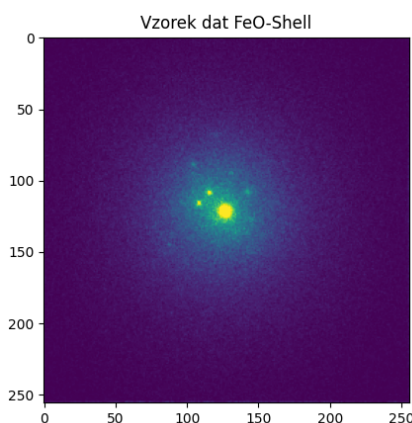
Kapitola 4

Generování syntetických dat

4.1 Odhadnutí charakteru dat

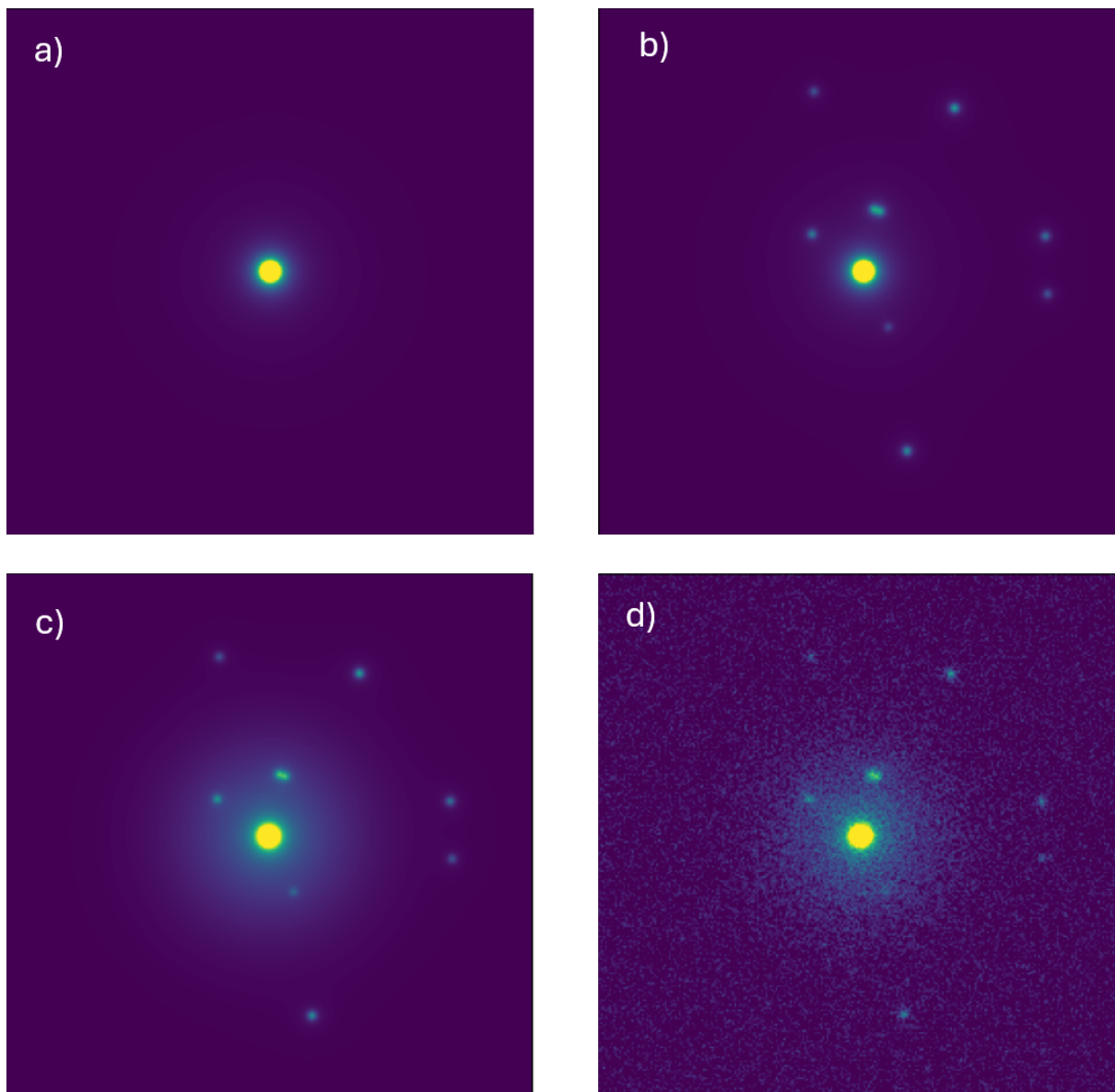
Nyní bychom rádi opustili klasické metody segmentace a vyzkoušeli několik možností, které nám nabízejí metody strojového učení. Problém zde jsou data. Ačkoliv by bylo možné ručně anotovat dostupné difraktogramy, jednalo by se o náročný a nepraktický úkol. Nejprve se tedy pokusíme difraktogramy nasimulovat, a tato syntetická data poté použít pro trénování neuronových sítí. Simulovat fyzikální proces difrakce by bylo příliš komplikované, cílem je pouze vytvořit snímky, které budou dostatečně podobné těm skutečným. K tomu využijeme několik pozorování. V první řadě, centrální maximum má vždy řádově vyšší intenzitu než difrakční maxima. Také víme, že po sečtení difraktogramů nám vzniknou soustředné kružnice okolo centrálního maxima, tudíž můžeme rozmístit simulované difrakční peaky do předem definované náhodně zvolené vzdálenosti od středu. Z teorie difrakce víme, že peaky mají Voigtovu distribuci. Také máme představu o charakteru pozadí - faktu, že pozadí je Gaussovské, jsme využili již v předchozí sekci. A nakonec, vzhledem k tomu, že se jedná o mikroskopii. Lze bezpečně předpokládat, že šum bude Poissonovský.

Kombinací všech těchto pozorování a předpokladů můžeme nasimulovat syntetické difraktogramy. Podívejme se jak vypadá reálný difraktogram vzorku Fe_3O_4 .



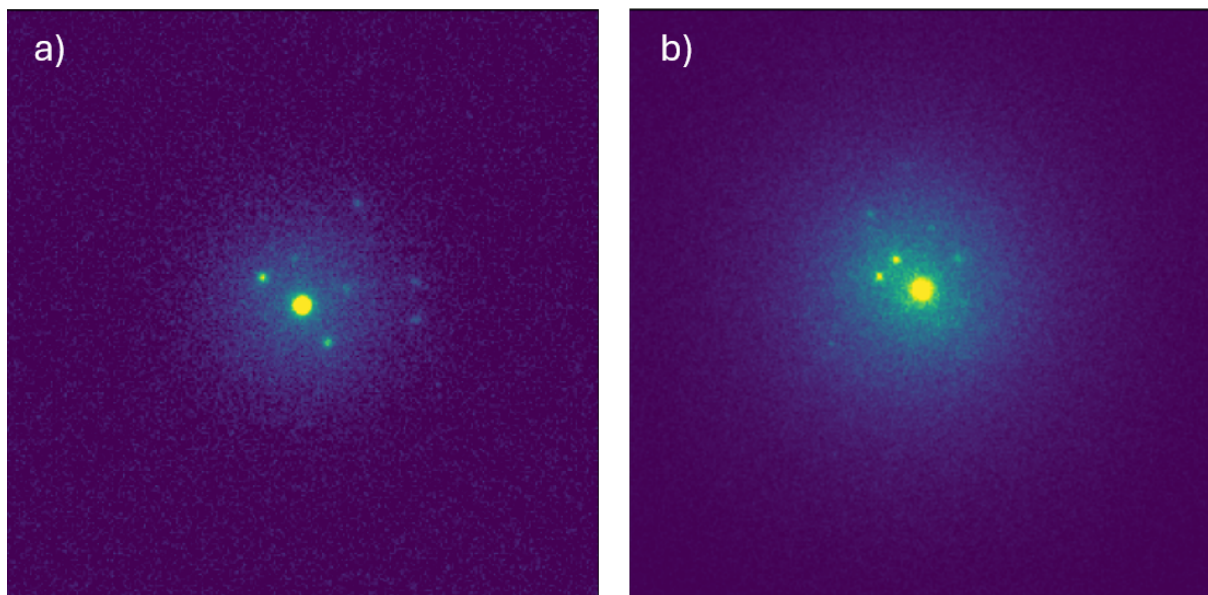
Obrázek 4.1: Ukázka jednoho difraktogramu vzorku Fe_3O_4

K tomuto charakteru snímků se pokusíme přiblížit. Do nulového pole tedy postupně přičteme centrální maximum, difrakční peaky, gaussovské pozadí a nakonec šum. Postup je znázorněný na obrázku 4.2.



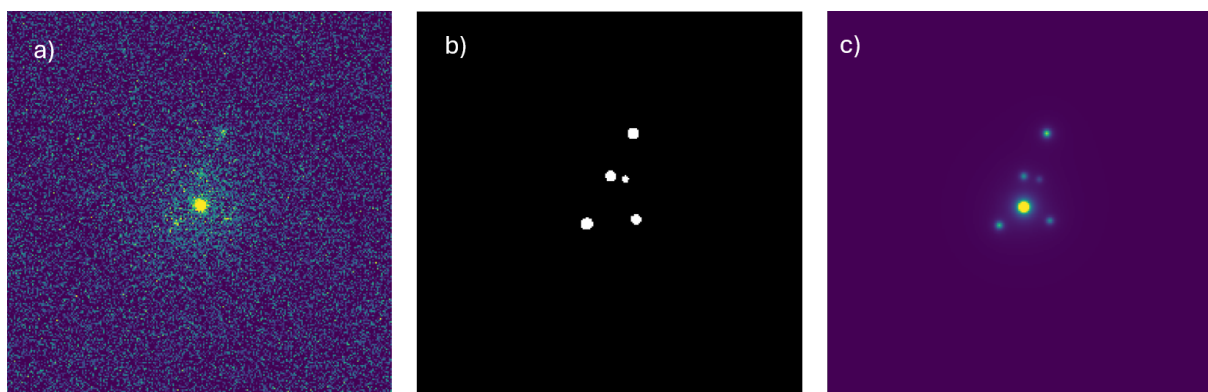
Obrázek 4.2: Proces simulace difraktogramu, (a) přidání centrálního peaku. (b) doplnění náhodných difrakčních peaků do soustředných kruhů okolo středu, (c) přičtení neuniformního Gaussovského pozadí, (d) přičtení Gaussovského šumu

Výhodou tohoto přístupu je především jednoduchost. Porovnejme reálný difraktogram s jedním náhodně nasimulovaným viz. obrázek 4.3.



Obrázek 4.3: Srovnání (a) simulovaných dat a (b) reálných naměřených dat.

Podstatou tohoto postupu je, že si můžeme jednoduše vygenerovat masky difrakčních obrazců a můžeme si nagenarovat neomezený počet difraktogramů s různou variabilitou šumu, intenzity pozadí, počtu peaků a jejich intenzit atp. Také můžeme generovat masky v případě silně zašuměných snímků, kde by bylo manuální anotování velmi obtížné. V šumu lze difrakční maxima jen těžko identifikovat, viz obrázek 4.4



Obrázek 4.4: Ukázka binární masky difrakčních peaků v silně zašuměném snímku. (a) vygenerovaný zašuměný snímek, (b) maska difrakčního obrazce. (c) původní snímek bez aditivního šumu.

Mírně předběhneme a poukážeme na zásadní problém, který motivuje celou následující sekci. Celou simulaci syntetických dat řešíme kvůli možnosti segmentovat difrakční obrazce pomocí neuronových sítí. A samotná segmentace se přes mnohé pokusy a různé vyzkoušené architektury nedaří. Přirozeně nejpravděpodobnější je, že naše syntetická data dostatečně nereprezentují reálně naměřené difraktogramy. Budeme se muset pokusit více přiblížit realitě.

4.2 Fyzikální simulace difrakce

V předchozí sekci jsme zmínili, že realistická simulace difraktogramů by byla příliš komplikovaná. Jenže experimenty naznačují, že nebudeme mít jinou možnost, než simulovat difrakci poctivě, chceme-li trénovat neuronové sítě na syntetických datech.

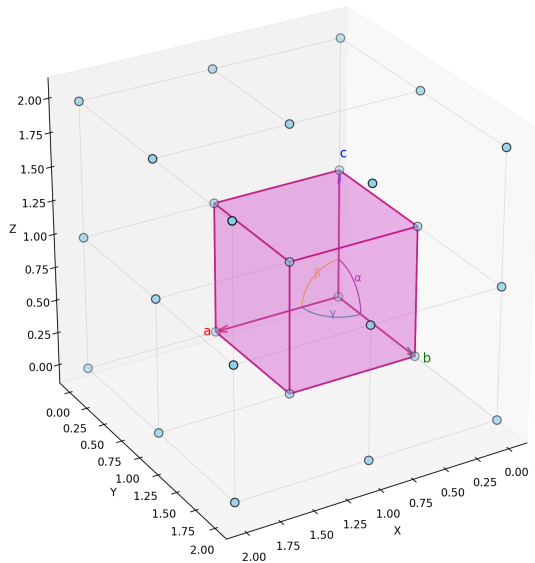
Pokusíme se tedy ve stručnosti vysvětlit, jakým způsobem budeme nyní generovat data. V první řadě si musíme určit vlnovou délku elektronů. K tomuto účelu využijeme De-Broglieovu podmínku [6], který ji představil již ve své dizertační práci v roce 1924:

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2m_0eV(1 + \frac{eV}{2m_0c^2})}},$$

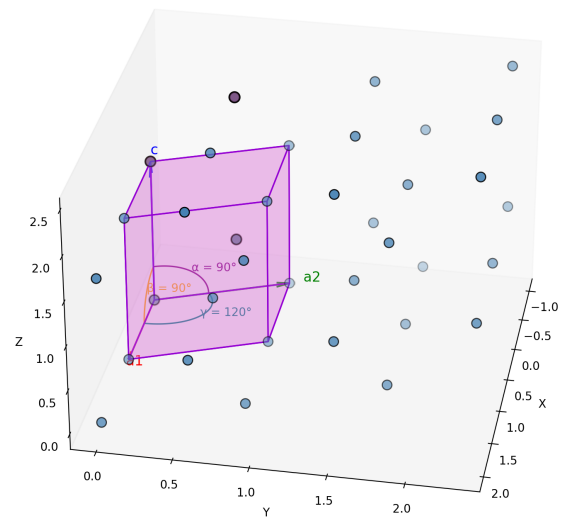
kde m_0 je klidová hmotnost elektronu, h je Planckova konstanta, e je elementární náboj a V je urychlovací napětí. Člen $1 + \frac{eV}{2m_0c^2}$ je relativistická korekce. Náš v praxi používaný mikroskop má energie zhruba 30kV, TEM mikroskopy mají energie ve stovkách kV. Při takovýchto urychlovacích napětích je již zapotřebí uvažovat relativistické efekty. V našem simulátoru tedy vybereme náhodné urychlovací napětí z rozmezí 10-400 kV a převedeme jej na vlnovou délku. Vlnová délka nám určí škálování difrakčního obrazce, Bragův úhel a také ji potřebujeme pro projekci obrazce do roviny simulovaného detektoru. Dále určíme objem elementární buňky. V každém krystalu můžeme určit rovnoběžnostěn obsahující uspořádání atomů, které se periodicky opakuje v celém krystalu. Tento rovnoběžnostěn nazýváme elementární buňka a její objem určíme jako

$$V = abc \sqrt{1 - \cos^2 \alpha - \cos^2 \beta - \cos^2 \gamma + 2 \cos \alpha \cos \beta \cos \gamma},$$

kde a, b, c jsou vektory, parametry konkrétní krystalické mřížky a α, β, γ jsou úhly mezi nimi. Pro lepší představu se podívejme na příklad kubické (obr. 4.5) a šestiuhleníkové (obr. 4.6) struktury a elementárních buněk.



Obrázek 4.5: Ukázka kubické krystalické struktury a elementární buňky.



Obrázek 4.6: Ukázka HCP krystalické struktury a elementární buňky.

Elementární objem nám dává představu o velikosti simulovaného vzorku v prostoru a použijeme ho k transformaci do reciprokého prostoru. Reciproký prostor je praktický způsob, jak reprezentovat periodické a symetrické vlastnosti krystalu. Reciproký prostor je Fourierovou transformací krystalové mřížky. Mějme Baravisovu mřížku [14], což není nic jiného než nekonečné pole bodů generovaných translacemi, tj. v R^3

$$L = \{\mathbf{R} = n_1\mathbf{a}_1 + n_2\mathbf{a}_2 + n_3\mathbf{a}_3 \mid n_1, n_2, n_3 \in \mathbb{Z}\},$$

kde $\mathbf{a}_1, \mathbf{a}_2, \mathbf{a}_3$ jsou lineárně nezávislé vektory. Reciproký prostor je poté definován jako

$$L^* = \{\mathbf{G} \in \mathbb{R}^3 \mid e^{i\mathbf{G} \cdot \mathbf{R}} = 1 \quad \text{pro všechny } \mathbf{R} \in L\}.$$

Vektory reciproké mřížky krystalu jsou definovány jako

$$\mathbf{a}_1^* = 2\pi \frac{\mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3}{V}, \quad \mathbf{a}_2^* = 2\pi \frac{\mathbf{a}_3 \times \mathbf{a}_1}{V}, \quad \mathbf{a}_3^* = 2\pi \frac{\mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_2}{V}.$$

a tvoří bázi reciprokého prostoru. Každý vektor reciproké mřížky lze zapsat jako lineární kombinaci

$$\mathbf{G} = h\mathbf{a}_1^* + k\mathbf{a}_2^* + l\mathbf{a}_3^* \quad \text{kde } h, k, l \in \mathbb{Z}.$$

h, k, l se nazývají Millerovy indexy. Tyto indexy využijeme v našem generátoru, Millerovy indexy nám říkají, které mezikrystalické roviny přispívají do finálního difrakčního obrazce. Každá povolená kombinace Millerových indexů odpovídá difrakčnímu maximu. Záměrně říkáme povolené kombinace, protože záleží na struktuře krystalu. U FCC krystalů musí být všechny indexy sudé, nebo liché. U diamantové mřížky musí být všechny indexy liché, nebo musí platit, že $h + k + l$ je násobkem 4.

Nyní, když máme Millerovy indexy definující krystal, potřebujeme vypočítat strukturní faktor F . Ten nám určí základní intenzitu difrakčního obrazce. Pro krystalické roviny určené Millerovými indexy je strukturní faktor definován jako

$$F(h, k, l) = \sum_j f_j \exp[2\pi i (hx_j + ky_j + lz_j)],$$

kde f_j je tabulková hodnota, nazývaná "atomic scattering factor", pro j -tý atom a x_j, y_j, z_j jsou pozice atomů v jednotkové buňce. Sčítáme přes všechny atomy, takže se začínají projevovat efekty konstruktivní a destruktivní interference. Kinematická teorie difrakce pokládá intenzitu za úměrnou strukturnímu faktoru a to následovně,

$$I_{\text{kinematical}} \propto |F(h, k, l)|^2.$$

Chceme uvažovat i tloušťku vzorků, stejně jako při reálných měřeních. Pro vzorek konečné tloušťky t interakce elektronů s krystalem vytváří oscilace v intenzitě. Běžná forma jak toto zahrnout je dle [15]

$$I \propto \frac{|F|^2 \sin^2\left(\frac{\pi}{\xi_g}\right)}{(\pi s)^2}, \quad (4.1)$$

kde $|F|^2$ je výchozí intenzita, kterou jsme napočítali výše, t je tloušťka simulovaného vzorku a ξ_g představuje excitační vzdálenost definovanou jako

$$\xi_g = \frac{1}{\lambda |g| |F|},$$

kde λ je vlnová délka, kterou jsme určili z De-Broglieovy podmínky, $|F|$ je strukturní faktor a $|g|$ je velikost mřížkového vektoru v reciprokém prostoru, tj.

$$|g| = \sqrt{(ha_1^*)^2 + (ka_2^*)^2 + (la_3^*)^2}.$$

a s ve 4.1 je deviační faktor kvantifikující, jak daleko se nacházíme od ideální Braggovy podmínky pro difrakci. Pro $s = 0$ je Braggova podmínka přesně splněna a intenzita je maximální. Celkově 4.1 vyjadřuje, jak se mění intenzita na základě velikosti vzorku a vzdálenosti od Braggova úhlu.

Musíme uvažovat další fyzikální efekt. Teplotní vibrace atomů v krystalické mřížce způsobují, že se atomy vychylují od očekávaných pozic, což rozmazává difraktogram. Tento efekt korigujeme Debye-Waller faktorem [16, 17]

$$I_{\text{corrected}} = I \times \exp \left[-B \left(\frac{|g|}{4\pi} \right)^2 \right],$$

kde

$$B = -8\pi^2 \ln (\text{teplotní faktor})$$

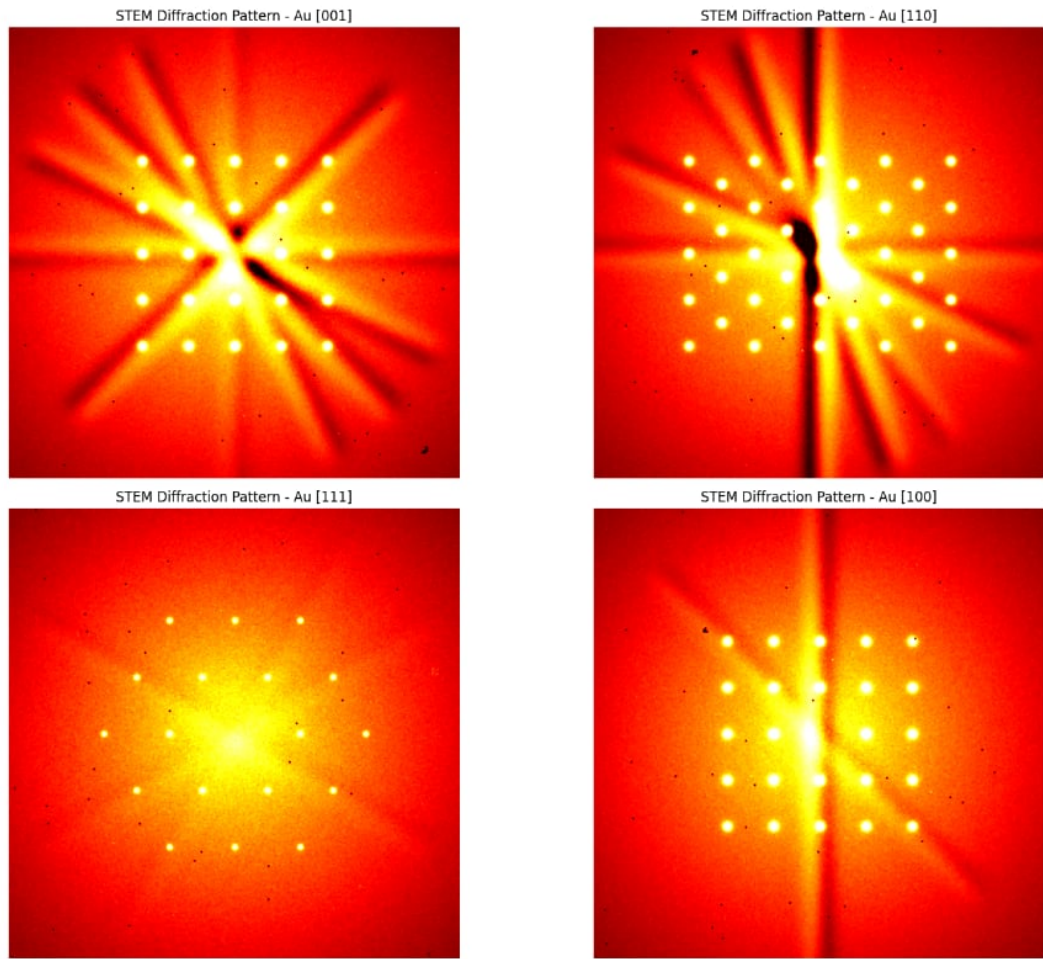
a teplotní faktor je tabulková hodnota. Logaritmus je zde, aby při vyšších teplotách, tedy výraznějších vibracích atomů, intenzita exponenciálně klesala pro difrakce pod vysokým úhlem.

Nyní přidáme centrální peak. Ten modelujeme normálním rozdělením

$$I_{\text{direct}}(r) \propto \exp \left(-\frac{r^2}{2\sigma^2} \right)$$

a vygenerujeme difrakční vzor z povolených difrakcí získaných dříve. Spočítáme souřadnice každého peaku projekcí reciproké mřížky do roviny detektoru. Do získaných bodů vložíme vhodně škálované Voigtovy profily. V zájmu realističnosti ještě uvažujeme jeden efekt, který se v reálných snímcích může vyskytnout - Kikutchiho linie.

Kikutchiho linie [18] se objevují primárně v elektronové difrakci. Na rozdíl od Roentgenových paprsků, elektrony silně interagují s hmotou. Jak elektrony procházejí krystalickým vzorkem, dochází jak k elastické difrakci, která je zodpovědná za dobře definované Braggovy peaky, tak neelastické difrakci, způsobené primárně teplotními vibracemi atomů a jinými nedokonalostmi v krystalickém vzorku. Pokud dojde k "odrazu" elektronu uvnitř krystalického vzorku, tak tyto odražené elektrony mohou vyhovět Braggově podmínce. Tento proces může vyprodukovat charakteristické změny v intenzitě difraktogramu, viz. obrázek 4.7. V tomto obrázku je efekt pro demonstrační účely uměle zesílen.



Obrázek 4.7: Ukázka synteticky generovaného difraktogramu se zvýrazněným efektem Kikutchi lines pro demonstraci.

Rigorózní vysvětlení tohoto jevu vyžaduje dynamickou teorii difrakce, která je daleko za dosahem této práce. V praxi by bylo potřeba řešit Schrödingerovu rovnici pro elektron v periodickém potenciálu. Tím se my zabývat nebudeme a přijmeme jako fakt, že intenzita je úměrná

$$I \propto \frac{\sin^2\left(\frac{\pi t}{\xi_g}\right)}{(\pi s)^2}.$$

Když dopadající svazek elektronů pronikne do krystalu, elektrony jsou neelasticky rozptýleny. Tyto rozptýlené elektrony pak mohou být znovu rozptýleny podle Braggova zákona. K jejich opětovnému rozptýlu dochází v rozsahu úhlů definovaném mírnými odchylkami od přesné Braggovy podmínky. Výsledkem je vznik dvojice pásů pro každou sadu krystalických rovin. Pásmo přebytku, kde je intenzita lokálně zvýšena a pásmo nedostatku, kde je intenzita odstraněna z pozadí. Jejich přesná poloha se řídí Braggovou podmínkou; v naší simulaci je poloha posunuta o hodnotu úměrnou Braggovu úhlu, který je dán vztahem

$$\theta_B = \arcsin\left(\frac{\lambda|g|}{2}\right). \quad (4.2)$$

V praxi by bylo neefektivní přesně modelovat tento proces. Proto pouze napodobíme Kikutchiho čáry tak, že pomocí Bresenhamova algoritmu [19] nakreslíme tyto čáry do difraktogramu na pozice, které vyhovují Braggově podmínce.

Pro úplnost nyní spojíme všechny diskutované jevy do jednotného generátoru syntetických difraktogramů. V prvním kroku inicializujeme generátor se všemi potřebnými parametry. Určíme rozlišení detektoru, zvolíme krystalovou strukturu (fcc, bcc apod.) a nadefinujeme parametry krystalové mřížky, tedy parametry a, b, c a úhly α, β, γ diskutované v části pokrývající elementární buňku. Zadáme atomy, ze kterých se krystal skládá a jejich pozice v krystalu, tloušťku vzorku, Debye-Wallerův teplotní faktor a parametry měření, jako je urychlovací napětí, šum, defekty detektoru a podobně.

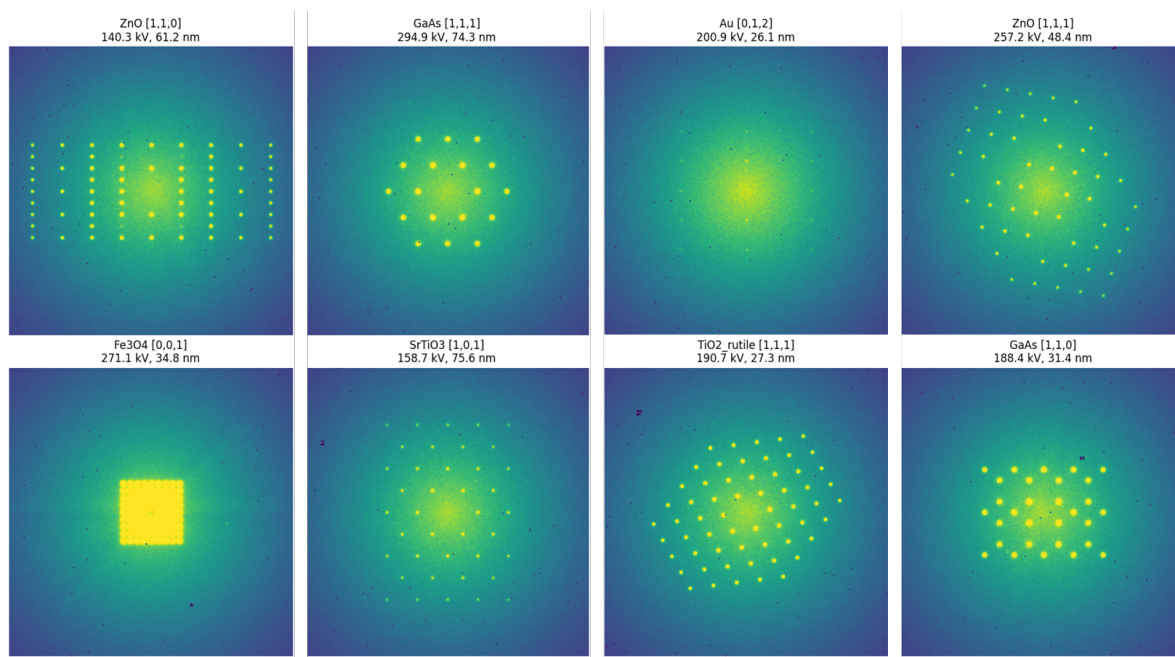
V druhém kroku napočteme potřebné parametry, tedy vlnovou délku elektronů a reciprokovou mřížku, konkrétně objem elementární buňky a bazické vektory reciprokové mřížky. Také načteme tabulkové hodnoty rozptylových faktorů pro uvažované atomy v krystalu.

Ve třetím kroku určíme, které kombinace Millerových indexů jsou povolené pro definovaný krystal. Procházíme všechny kombinace (h, k, l) Millerových indexů v definovaném rozpětí, v našem případě menší než 12. Pro každou kombinaci (h, k, l) aplikujeme pravidla pro konkrétní krystalickou strukturu, například pro FCC krystal musí být všechny indexy sudé, nebo liché. Také spočteme strukturní faktor, velikost reciprokého mřížkového vektoru a určíme intenzitu zahrnující všechny diskutované faktory. Finální tvar intenzity tedy bude

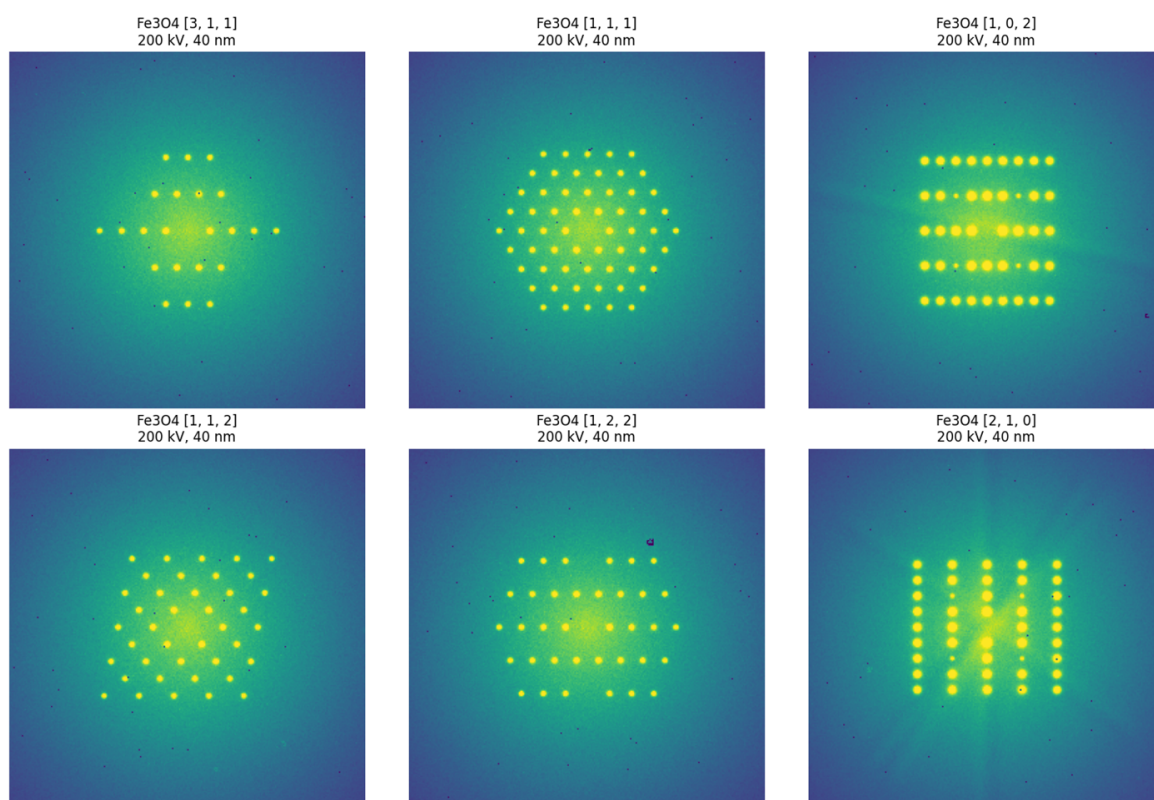
$$I_{hkl} = \frac{|F_{hkl}|^2 \sin^2\left(\frac{\pi l}{\xi_{hkl}}\right)}{(\pi s_{hkl})^2} \exp\left[-B\left(\frac{|\mathbf{G}_{hkl}|}{4\pi}\right)^2\right].$$

V posledním kroku spočteme ještě projekci reciprokého mřížkového vektoru do roviny simulovaného detektoru, čímž získáme finální difraktogram. Ještě stojí za zmínku, že do intenzity přidáváme škálovací faktor. To proto, aby centrální maximum saturovalo simulovaný detektor a difrakční maxima vznikala s intenzitou, která zhruba odpovídá reálným snímkům. Pro tento účel vznikla jednoduchá funkce jako doplněk generátoru syntetických dat. Tato funkce otevře několik reálných difraktogramů; uživatel označí centrální maximum a několik difrakčních maxim. Spočte se poměr intenzit centrálního maxima a průměrné intenzity difrakčních peaků. Několik těchto měření nám pak dává možnost realisticky definovat rozsah intenzit difrakčních obrazců.

Podívejme se na pár synteticky vygenerovaných difraktogramů na obrázcích 4.8 a 4.9.



Obrázek 4.8: Ukázka simulovaných difraktogramů, vygenerovaných pro 8 náhodných krystalů s náhodnými parametry a v náhodných orientacích.



Obrázek 4.9: Ukázka simulovaných difraktogramů krystalu Fe_3O_4 pro 6 různých orientací.

Kapitola 5

Detekce pomocí neuronových sítí

Celá úloha, kterou zde řešíme, působí tak, že naprosto ideální by bylo nasazení metod strojového učení. Segmentace jako taková je dobře prozkoumaná úloha a existuje řada předtrénovaných modelů, které by stačilo dotrénovat na našich datech. Na první pohled se může náš úkol zdát svým způsobem triviální - segmentovat peaky v obrázku. Jak se však ukáže, celá úloha je daleko složitější.

Pro první experimenty se segmentací pomocí strojového učení jsme chtěli využít FCN [23]. Tato volba byla rozumná z pohledu implementace. FCN má snadno dostupné předtrénované váhy a je snadné model dotrénovat pomocí pytorch lightning. Všechny pokusy s FCN skončily neúspěchem, protože dostupné modely jsou naučené na běžných snímcích. Pro naše velmi specifické snímky se síť neučila a segmentace nefungovala. Proto jsme se pokusili využít segmentační sítě typu U-Net [24]. Naše použitá architektura je shrnutá v tabulce 5.1.

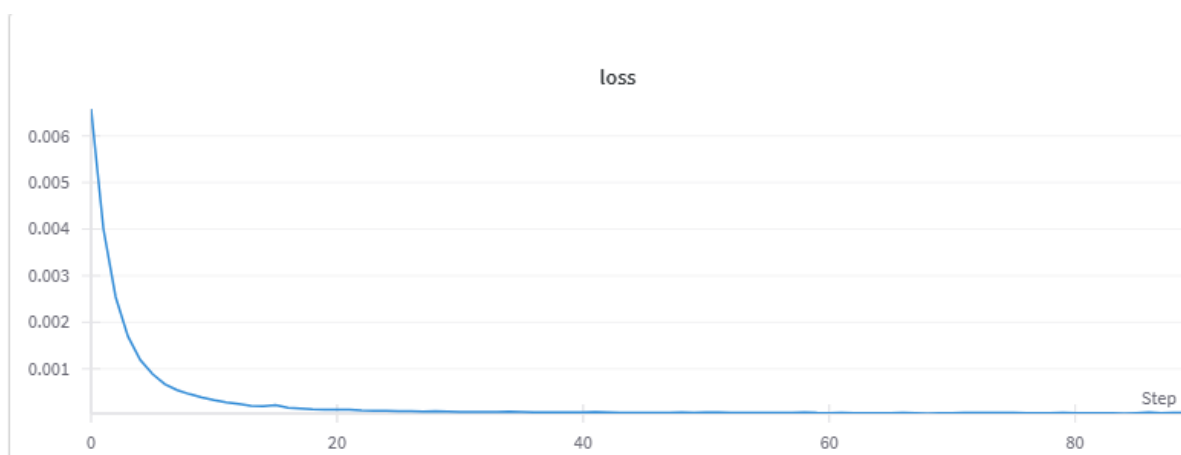
Stage	Vrstva	Výstup	Poznámka
Vstup	-	(B, 1, H, W)	Originální difraktogram
Encoder 1	Conv2D×2 + BN + ReLU	(B, 16, H, W)	Počet filtrů = 16
Down 1	MaxPool + Conv2D×2	(B, 32, H/2, W/2)	
Down 2	MaxPool + Conv2D×2	(B, 64, H/4, W/4)	
Down 3	MaxPool + Conv2D×2	(B, 128, H/8, W/8)	
Up 1	Upsample + Conv2D×2	(B, 64, H/4, W/4)	+ Skip propojení
Up 2	Upsample + Conv2D×2	(B, 32, H/2, W/2)	+ Skip propojení
Up 3	Upsample + Conv2D×2	(B, 16, H, W)	+ Skip propojení
Výstup	Conv2D (1x1)	(B, 1, H, W)	Výstupní maska

Tabulka 5.1: Shrnutí použitého U-Netu

K trénování jsme využili synteticky generované datasety. Nejprve dataset, který jsme generovali pouze na základě odhadnutého charakteru dat. Podívejme se na obrázek 5.1, který zachycuje vývoj učení, skutečnou masku a predikovanou masku. Síť se učila velmi rychle, loss zobrazený na obrázku 5.2 konvergoval také rychle. I s takto jednoduchým modelem učení fungovalo výborně.

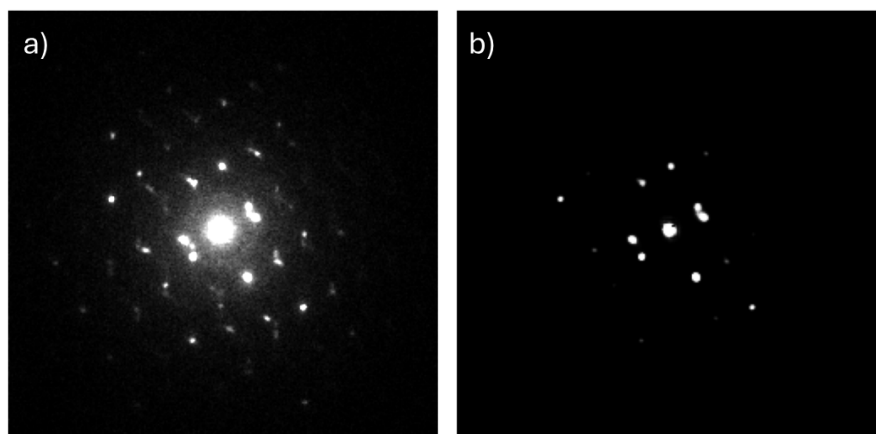
Cyklus	1	5	50	100
Ground Truth				
Predikce				

Obrázek 5.1: Vývoj učení U-Netu 5.1, ground truth masky a predikované masky.



Obrázek 5.2: Loss modelu definovaného v tabulce 5.1 v průběhu učení

Problém nastal při segmentaci skutečných snímků. Bez ohledu na nastavení generátoru syntetických dat a nastavení U-Netu, na skutečných snímcích tento přístup nefungoval. Nejlepší výsledek, který jsme takto získali je na obrázku 5.3. Je naprosto evidentní, že tyto výsledky nám k ničemu nebudou. Ve srovnání s dosud uvažovanými klasickými metodami jsme nezachytili téměř žádné peaky vyjma pár nejsilnějších. Jak jsme již okomentovali dříve, testy provádíme na vzorku zlata, protože zlato dobře difraktuje elektrony a funguje na něm většina metod. Jedná se tedy o vhodný vzorek pro testování a odhalení problémů.



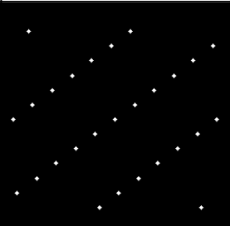
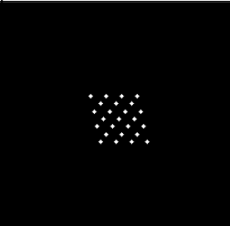
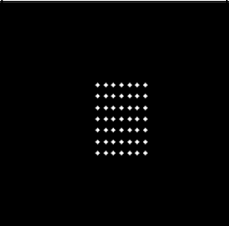
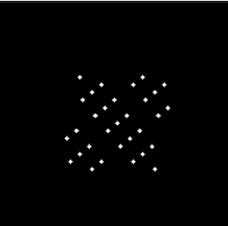
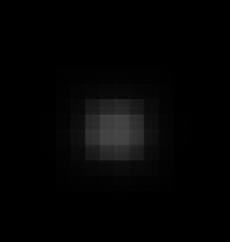
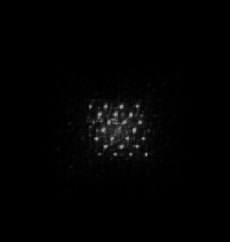
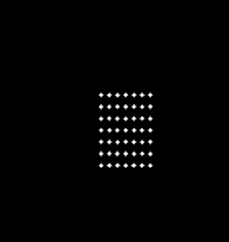
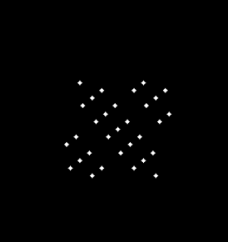
Obrázek 5.3: Inference modelu 5.1 na difraktogramu vzorku zlata (a) a vygenerovaná maska (b).

Skutečnost, že je tento výsledek v praxi nepoužitelný, nás nejprve vedla ke snaze vylepšit samotný U-Net. Vytvořili jsme hlubší variantu stejné sítě, přidali jsme dropout za účelem regularizace, přidali jsme reziduální spojení a používáme weight decay jako další formu regularizace. Architektura je shrnutá v tabulce 5.2.

Stage	Vrstva	Výstup	Poznámka
Vstup	-	(B, 1, H, W)	Grayscale input
Initial Block	Residual ConvBlock	(B, 8, H, W)	Start filters = 8
Down 1	MaxPool + Residual ConvBlock	(B, 16, H/2, W/2)	Dropout 0.4
Down 2	MaxPool + Residual ConvBlock	(B, 32, H/4, W/4)	Dropout 0.4
Down 3	MaxPool + Residual ConvBlock	(B, 64, H/8, W/8)	Dropout 0.4
Down 4	MaxPool + Residual ConvBlock	(B, 128, H/16, W/16)	Dropout 0.4
Down 5	MaxPool + Residual ConvBlock	(B, 256, H/32, W/32)	Dropout 0.4
Down 6	MaxPool + Residual ConvBlock	(B, 512, H/64, W/64)	Dropout 0.4
Down 7	MaxPool + Residual ConvBlock	(B, 1024, H/128, W/128)	Dropout 0.4
Down 8	MaxPool + Residual ConvBlock	(B, 2048, H/256, W/256)	Dropout 0.4
Up 1	Upsample + Residual ConvBlock	(B, 1024, H/128, W/128)	+ Skip connection
Up 2	Upsample + Residual ConvBlock	(B, 512, H/64, W/64)	+ Skip connection
Up 3	Upsample + Residual ConvBlock	(B, 256, H/32, W/32)	+ Skip connection
Up 4	Upsample + Residual ConvBlock	(B, 128, H/16, W/16)	+ Skip connection
Up 5	Upsample + Residual ConvBlock	(B, 64, H/8, W/8)	+ Skip connection
Up 6	Upsample + Residual ConvBlock	(B, 32, H/4, W/4)	+ Skip connection
Up 7	Upsample + Residual ConvBlock	(B, 16, H/2, W/2)	+ Skip connection
Up 8	Upsample + Residual ConvBlock	(B, 8, H, W)	+ Skip connection
Výstup	Conv2D (1x1)	(B, 1, H, W)	Sigmoid output

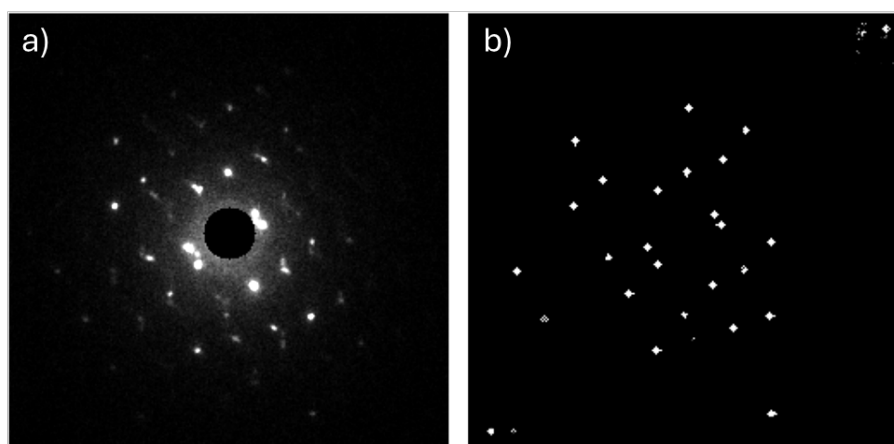
Tabulka 5.2: Shrnutí modifikovaného U-Netu.

Výsledky byly prakticky identické. To samo o sobě nebylo překvapením. Problém není v učení, ale v tom, že simulátor syntetických dat dostatečně dobře nereprezentuje skutečná data. Tento problém byl zásadní motivací pro vytvoření fyzikálně přesného simulátoru dat. Myšlenka byla taková, že když hádáme pouze charakter snímků, tak nevyužíváme fakt, že difraktogramy mají danou strukturu. Když budeme provádět přesné simulace, naše neuronová síť se může naučit i strukturu difraktogramu. Trénování modelu bylo i v tomto případě bez komplikací viz. obrázek 5.4.

Cyklus	1	5	50	100
Ground Truth				
Predikce				

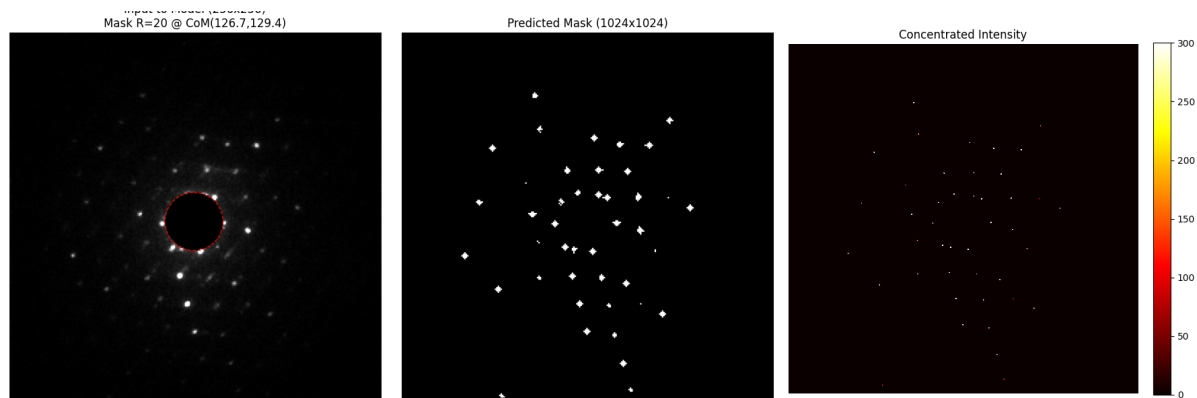
Obrázek 5.4: Vývoj učení U-Netu 5.2, ground truth masky a predikované masky.

Podívejme se na výsledek inference na jednom difraktogramu na obrázku 5.5.



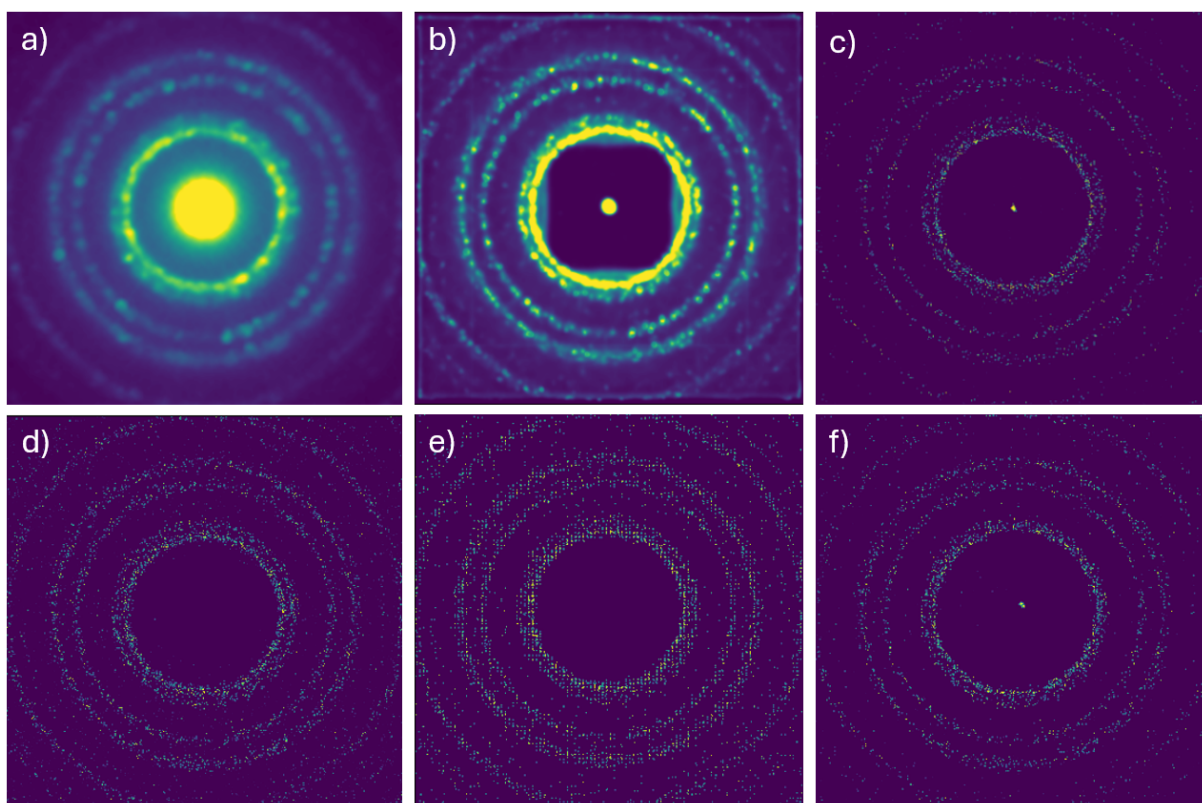
Obrázek 5.5: Inference modelu 5.2 na difraktogramu vzorku zlata (a) a vygenerovaná maska (b).

Vidíme, že výsledek je výrazně lepší, i když stále daleko od ideálu. Slabší maxima stále nedetekujeme, i přesto se jedná o dostatečný pokrok, který nám umožňuje pokusit se o generování práškového difraktogramu. Postup bude stejný jako u předchozích segmentačních metod. Spočítáme těžiště každého nalezeného peaku a do tohoto těžiště vložíme sumu intenzit peaku. Proces je zobrazen na obrázku 5.6. Centrální maximum maskujeme, výsledky segmentace jsou takto lepší.

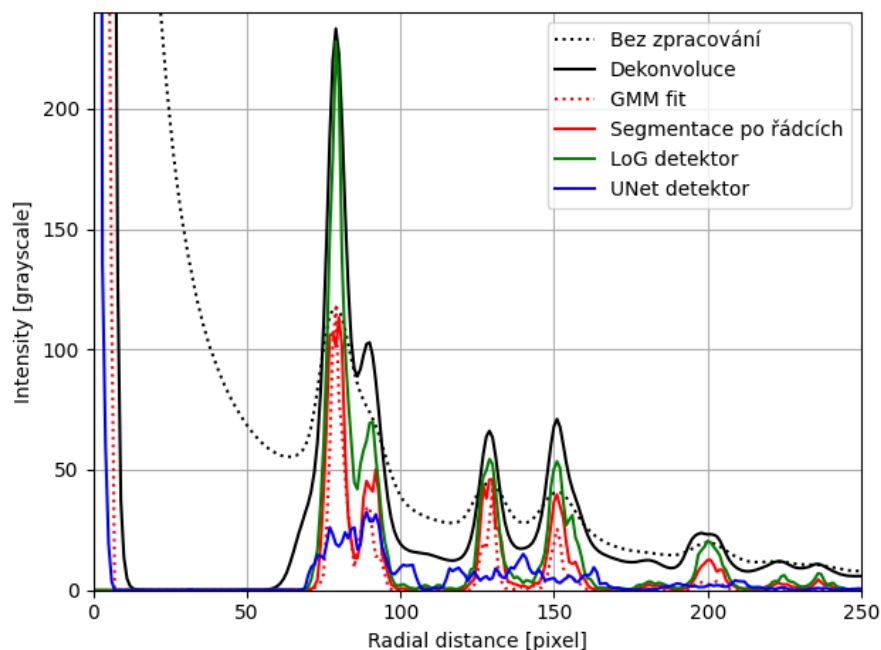


Obrázek 5.6: Proces rekonstrukce difraktogramu pomocí segmentace U-Netem 5.2

Výsledky, i přes toto zlepšení, stále nejsou uspokojivé. Vizuální srovnání difraktogramů vygenerovaných všemi diskutovanými metodami máme na obrázku 5.7. Vizuálně se difraktogram zdá v pořádku, ale profil intenzit na obrázku 5.8 značí, že máme mnoho falešných detekcí a rovněž že spoustu maxim nedetekujeme vůbec.

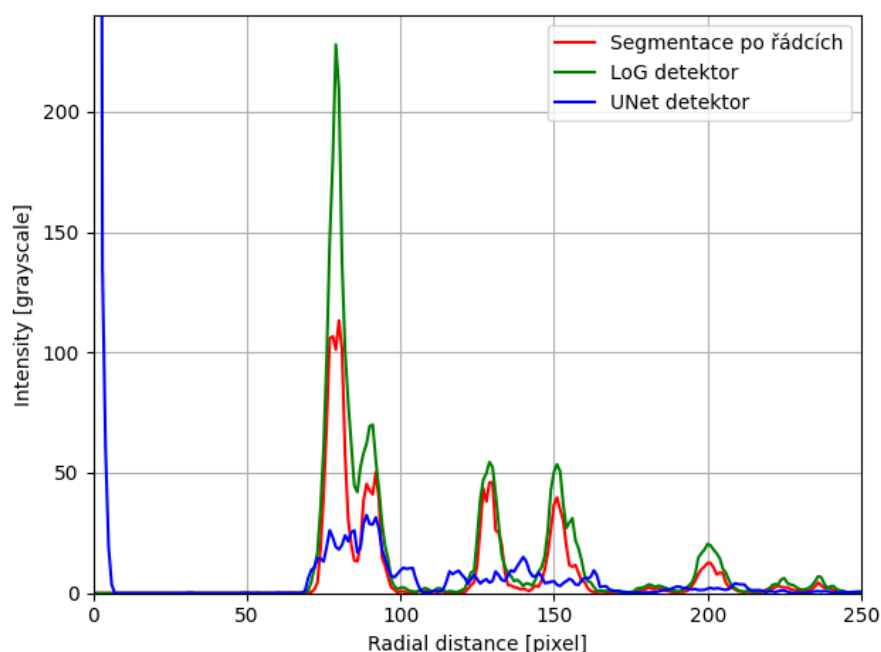


Obrázek 5.7: Srovnání práškových difraktogramů vzorku krystalu zlata (a) bez zpracování, (b) dekonvoluce Richardson Lucyho algoritmem, (c) fitování GMM do snímků, (d) segmentace prahováním řádků v polárních souřadnicích, (e) LoG detektor, (f) U-Net segmentace.



Obrázek 5.8: Srovnání profilů intenzit práškových difraktogramů vzorku zlata z obrázku 5.7.

Pro větší přehlednost se ještě podívejme na obrázek 5.9, na profily intenzit pouze pro 3 metody navržené v této práci



Obrázek 5.9: Srovnání profilů intenzit práškových difraktogramů vzorku zlata získaných třemi navrženými metodami

Bohužel z tohoto profilu není možné ani rekonstruovat srovnání s teoretickými profily. K tomu je zapotřebí manuálně označit pozadí snímku a v profilu získaném segmentací U-Netem není patrné, kde se nacházejí hledaná maxima.

Výsledek ze segmentace je zajímavý z jiného důvodu. Zjistili jsme, že pro účely trénování na syntetických datech je nezbytné generovat snímky prostřednictvím simulace fyzikálního procesu difrakce. Pro dosažení spolehlivých výsledků nelze spoléhat pouze na odhadovaný charakter difraktogramů. Segmentace pomocí metod hlubokého učení má jednu zásadní výhodu - rychlost. Zpracování je v průměru 10x rychlejší než segmentace po řádcích, 40 rychlejší než fitování GMM.

Přestože výsledky nejsou dobré ani na testovacím vzorku zlata, ukazuje se, že tato metoda má potenciál, a proto má smysl směřovat další výzkum k optimalizaci generování syntetických dat a vylepšení segmentačních sítí.

Kapitola 6

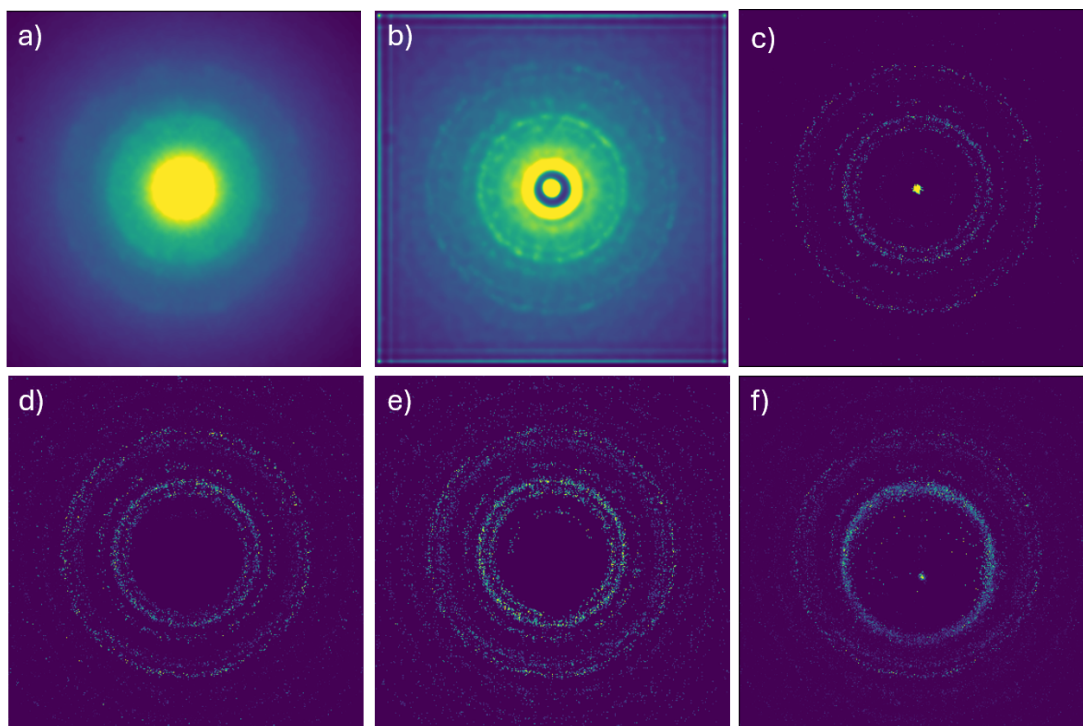
Experimentální výsledky

V této části vyzkoušíme všechny navržené metody analýzou dalších vzorků. Část experimentů jsme prováděli v demonstračních příkladech na vzorku zlata. Zlato však velmi dobře difraktuje elektrony a funguje na něm většina metod. Cílem této části je prověřit navrhované metody na vzorcích, u kterých dosavadní metody selhávají. V [9] jsme navrhli metodu fitování GMM, která fungovala velmi dobře i na horších vzorcích, dalším cílem je tedy porovnat navrhované metody s metodou použitou v [9].

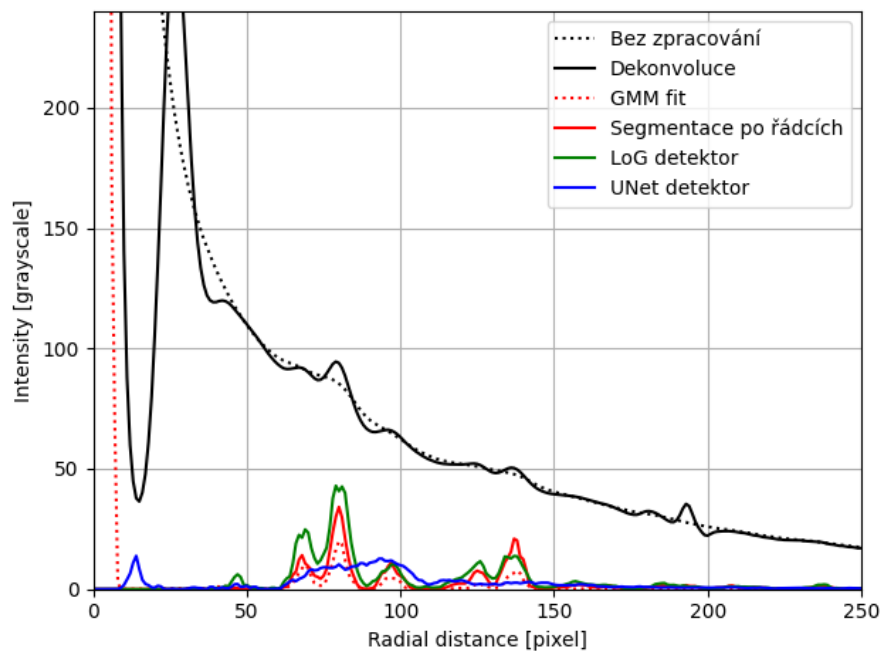
Testovat budeme 3 vzorky. Krystaly Fe_3O_4 , TbF_3 a LaF_3 . Všechny vzorky před rekonstrukcí difraktogramu projdou zpracováním, které je detailně rozebrané v [9] a znovu se mu věnovat nebudeme. Prakticky jde pouze o vyfiltrování souborů s nízkou entropií a vyřazení podezřelých snímků, například v případě, kdy se nepodaří lokalizovat střed difraktogramu.

6.1 Vzorek Fe_3O_4

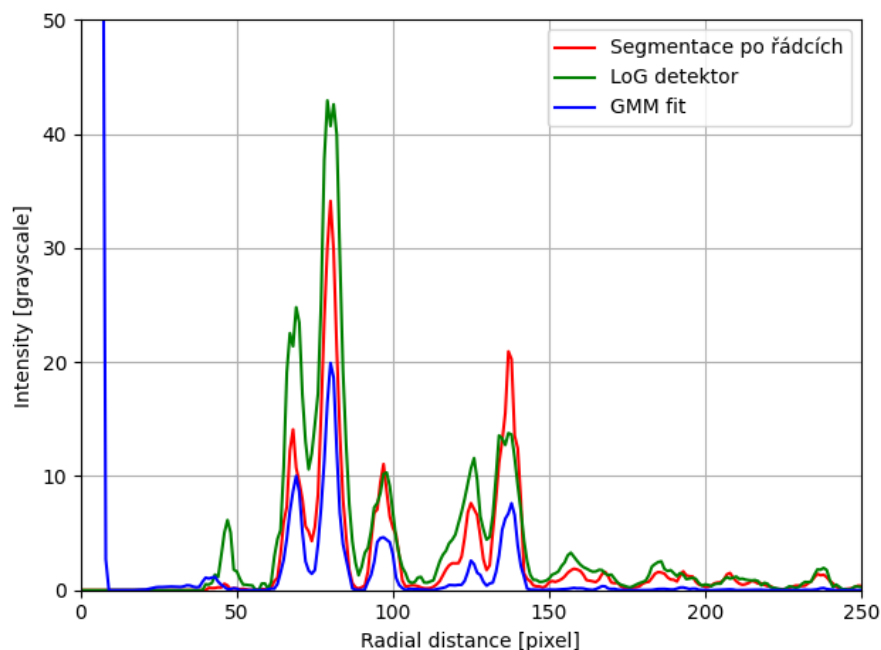
Začneme analýzou vzorku magnetitu - tedy oxidu železnato-železitého. Prvním krokem je vizuální porovnání všech metod. Práškové difraktogramy jsou zobrazeny na obrázku 6.1. Na první pohled se zdá, že metoda segmentace prahováním po řádcích a LoG detektor produkují lepší výsledek než GMM fit navrhovaný v [9]. V kontrastu s tím U-Net segmentace ani na tomto vzorku nefunguje příliš dobře. Tato vizuální pozorování potvrzují i profily intenzit 6.2. Výsledek získaný U-Netem není vhodný pro další zpracování. Podívejme se ale na srovnání pouze GMM fitu, segmentace po řádcích a LoG detektoru 6.3. Potvrzuje se naše předchozí zjištění, že oproti fitování GMM novými navrhovanými metodami zachytíme i maxima dále od středu snímku. Také nové metody lépe zachycují intenzitu maxim a LoG detektor zachytil i jedno maximum blízko středu, kde ostatní metody nic nedetekují.



Obrázek 6.1: Srovnání práškových difraktogramů vzorku krystalu magnetitu (a) bez zpracování, (b) dekonvoluce Richardson Lucyho algoritmem, (c) fitování GMM do snímků, (d) segmentace prahováním řádků v polárních souřadnicích, (e) LoG detektor, (f) U-Net segmentace.

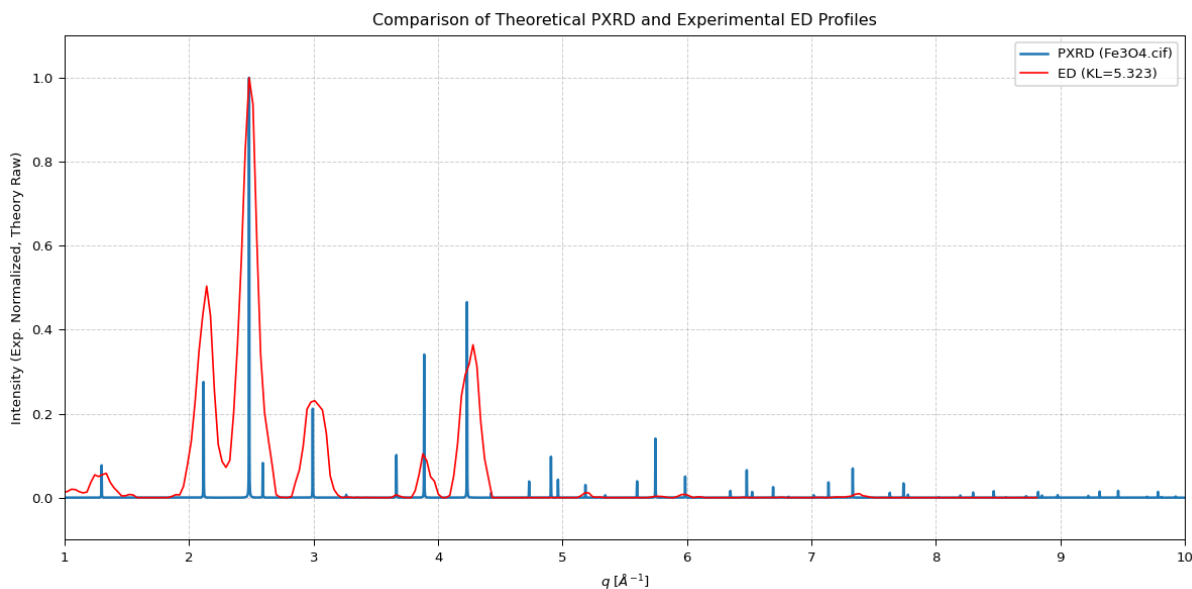


Obrázek 6.2: Srovnání profilu intenzit práškových difraktogramů vzorku Fe_3O_4 získaných všemi diskutovanými metodami

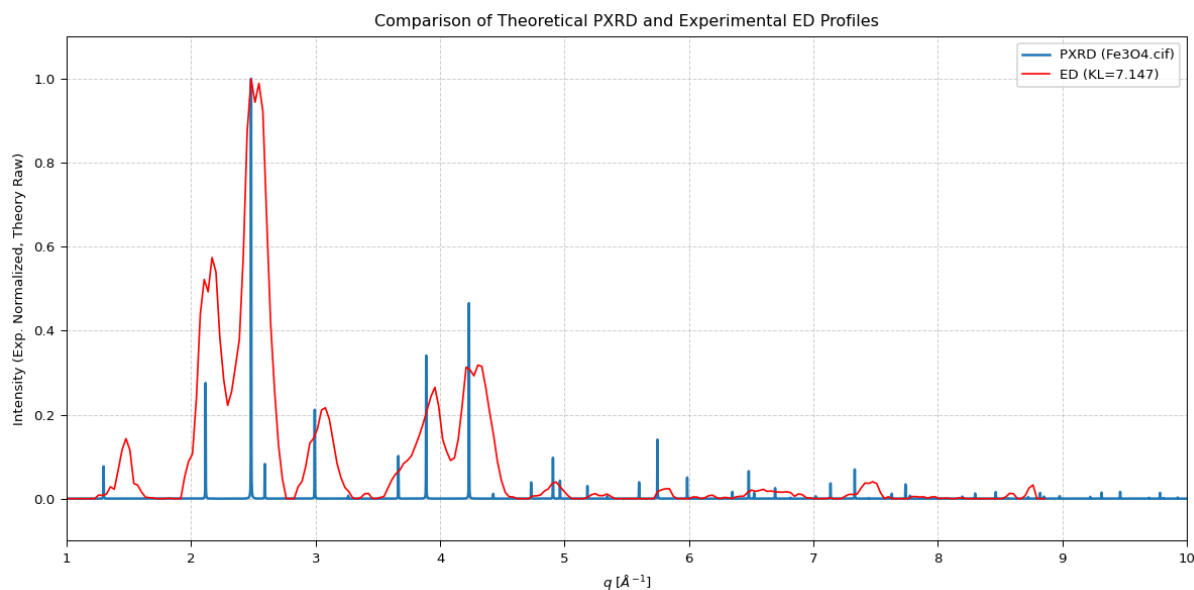


Obrázek 6.3: Srovnání profilu intenzit práškových difraktogramů vzorku Fe_3O_4 získaných GMM fitem, segmentací po řádcích a LoG detektorem.

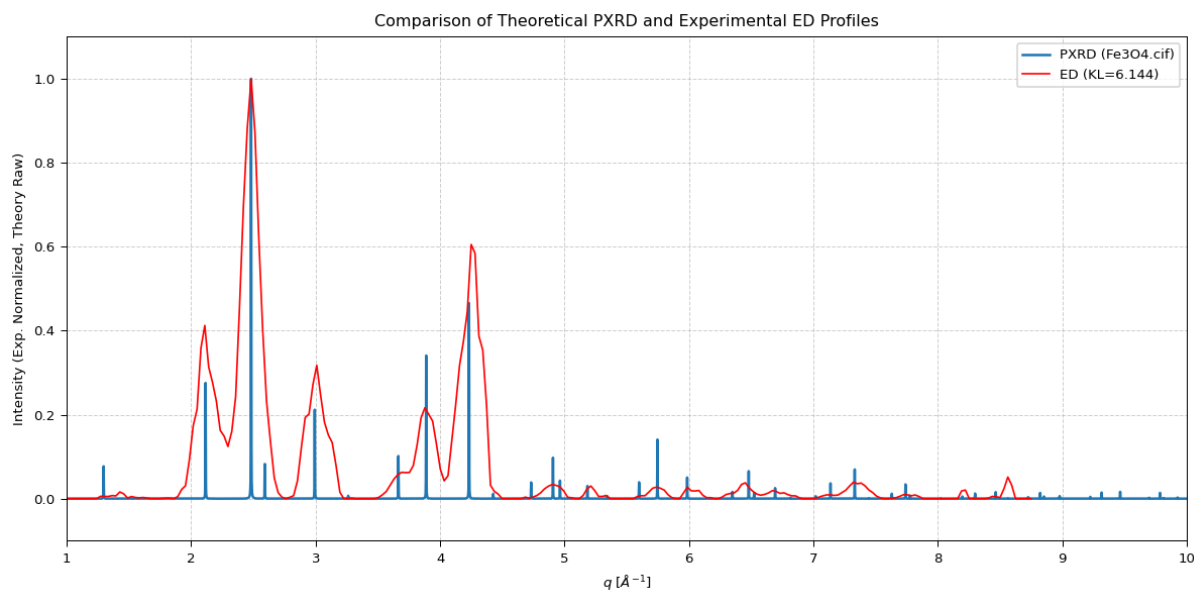
Podívejme se na srovnání s teoretickými profily na obrázcích 6.4, kde máme dosud nejlepší metodu fitování GMM, 6.5, s metodou LoG detektoru a 6.6 s metodou segmentace prahováním po řádcích.



Obrázek 6.4: Srovnání profilu intenzit práškového difraktogramu vzorku magnetitu získaného GMM fitováním s teoreticky napočtenými hodnotami.



Obrázek 6.5: Srovnání profilu intenzit práškového difraktogramu vzorku magnetitu získaného LoG detektorem s teoreticky napočtenými hodnotami.

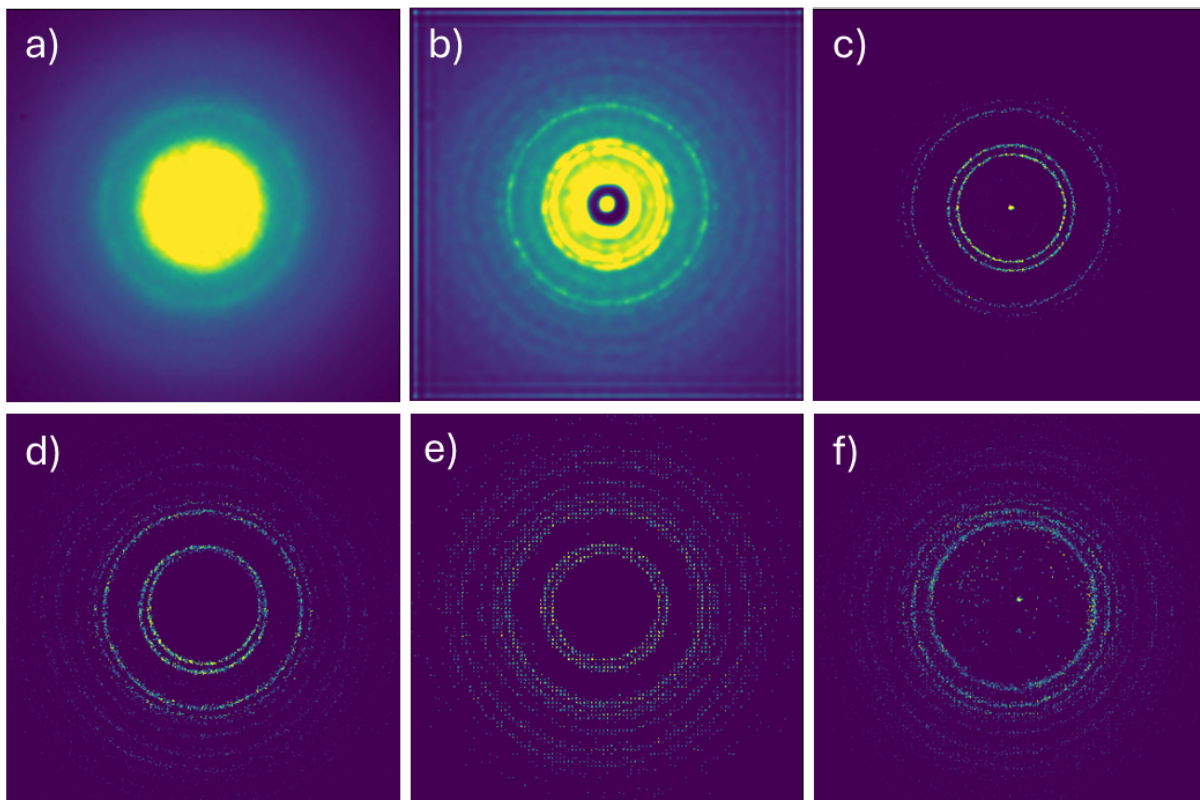


Obrázek 6.6: Srovnání profilu intenzit práškového difraktogramu vzorku magnetitu získaného segmentací prahováním po řádcích s teoreticky napočtenými hodnotami.

Všechna porovnání odpovídají našim počátečním pozorováním na vzorku zlata. Nové metody lépe zachycují maxima v odlehlých částech snímku. Ve srovnání s GMM metoda využívající LoG detektor i metoda segmentace prahováním po řádcích. LoG detektor správně zachytil jedno maximum blízko středu snímku, ale selhala zde jeho správná lokalizace. Poloha tohoto maxima lépe odpovídá u fitu GMM. Segmentace prahováním zase vizuálně lépe vyhovuje očekávaným teoretickým profilům, vyjma tohoto úvodního maxima

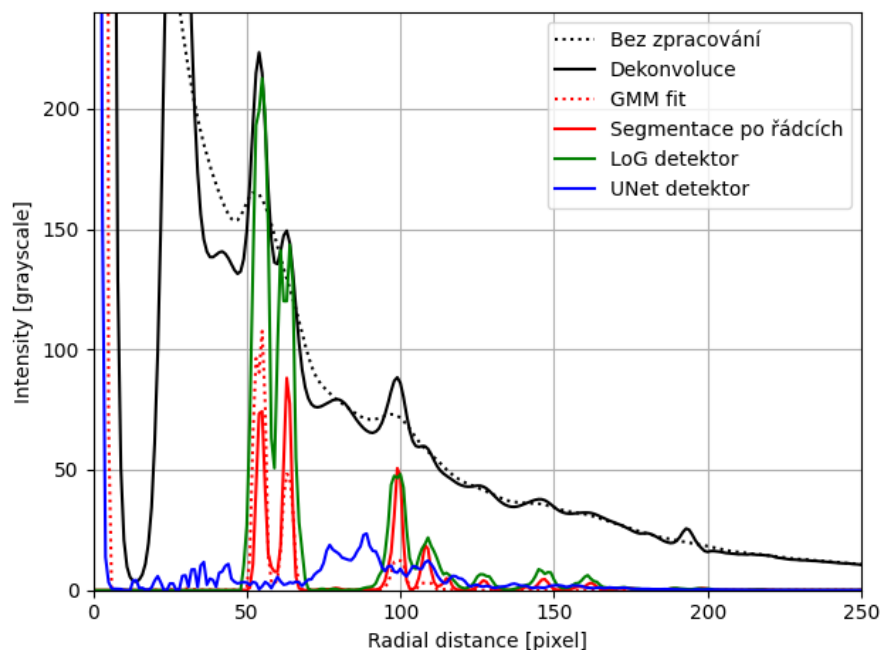
6.2 Vzorek TbF_3

Dalším vzorkem, na kterém vyzkoušíme všechny navržené metody, je TbF_3 . Znovu se nejprve podíváme na samotné práškové difraktogramy na obrázku 6.7. Podobně, jako v předchozích případech, vizuálně se všechny práškové difraktogramy získané novými metodami vyjma U-Netu zdají dobré. Podívejme se ještě na příslušné profily intenzit pro všechny metody 6.8 a pro nově navržené metody ve srovnání s GMM fitem 6.9.

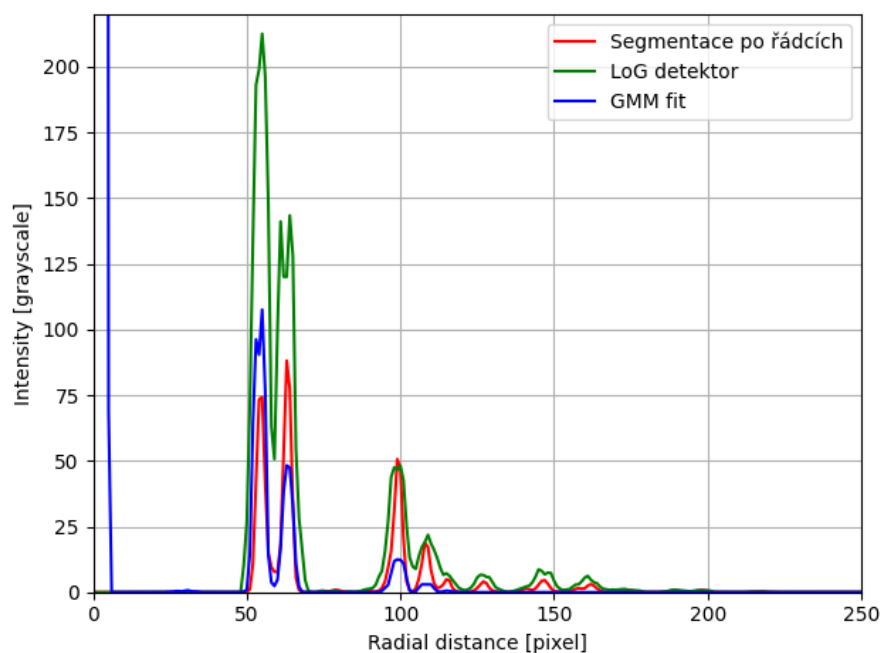


Obrázek 6.7: Srovnání práškových difraktogramů vzorku krystalu TbF_3 (a) bez zpracování, (b) dekonvoluce Richardson Lucyho algoritmem, (c) fitování GMM do snímků, (d) segmentace prahováním řádků v polárních souřadnicích, (e) LoG detektor, (f) U-Net segmentace.

Profily intenzit opět ukazují na značný pokrok, kterého jsme dosáhli se segmentací prahováním po řádcích a LoG detektorem. Získáváme dobře oddělené i dobře lokalizované peaky, a to i dále od středu, kde GMM selhává. Pouze segmentace pomocí U-Netu nefunguje; opět jsme získali profil, který není možné dále zpracovat. Vizuálně v práškovém difraktogramu 6.7(f) jsou typické soustředné kružnice dobře detekované, ale falešné detekce nám neumožní maxima v profilu intenzit oddělit od sebe.



Obrázek 6.8: Srovnání profilu intenzity všech difraktogramů vzorku TbF_3 z 6.7

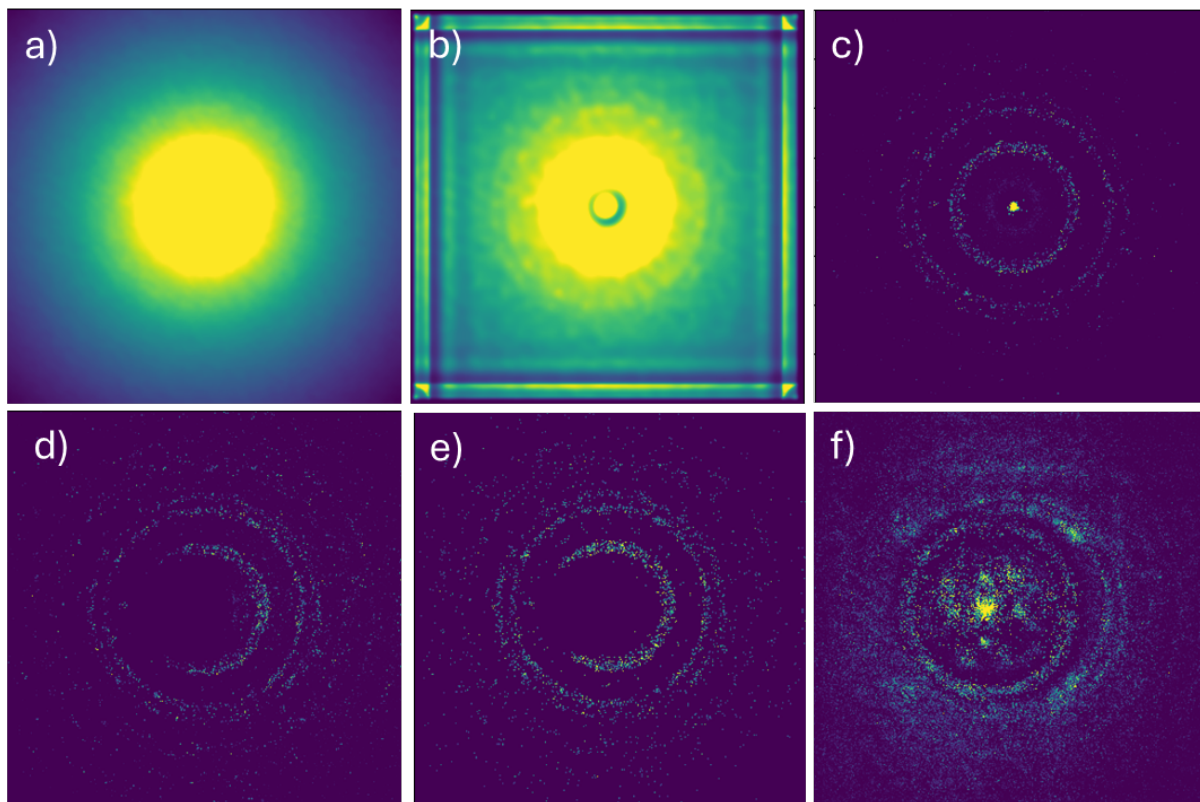


Obrázek 6.9: Srovnání profilů intenzit difraktogramů vzorku TbF_3 , získaných nově navrženými metodami a fitováním GMM.

K TbF_3 nemáme k dispozici teoretickou strukturu krystalu, proto nemůžeme porovnat výsledek s teoretickým profilem. I tak se jedná o zajímavý experiment, který potvrzuje dosavadní pozorování o účinnosti nových metod.

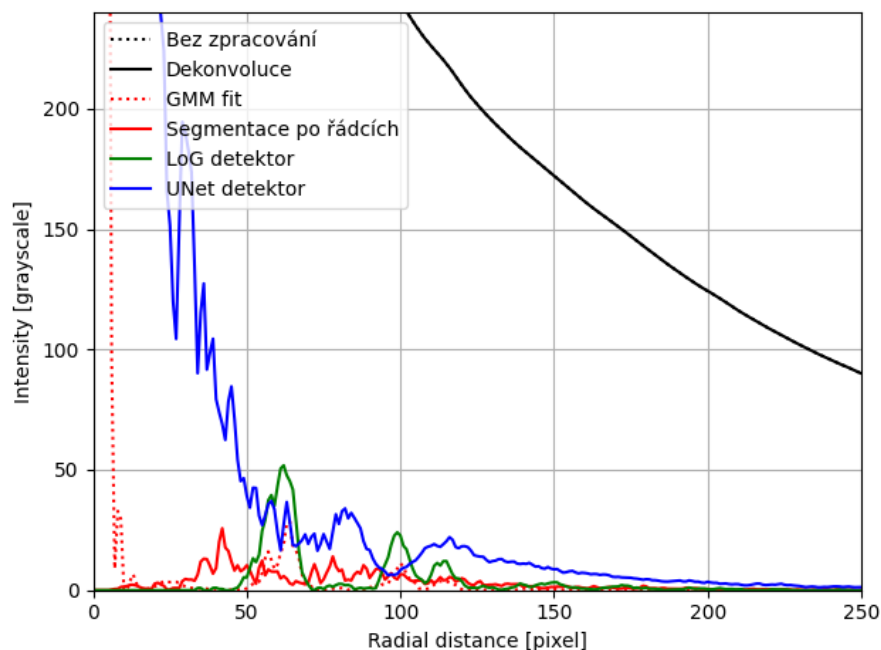
6.3 Vzorek LaF_3

Poslední vzorek na kterém o zkoušíme navrhované metody je LaF_3 . Tento vzorek odolával veškerým pokusům o zpracování a dosud jediná metoda, která fungovala bylo fitování Gaussovské směsi. Znovu se nejprve podíváme na samotné práškové difraktogramy na obrázku 6.10 získané jednotlivými metodami.

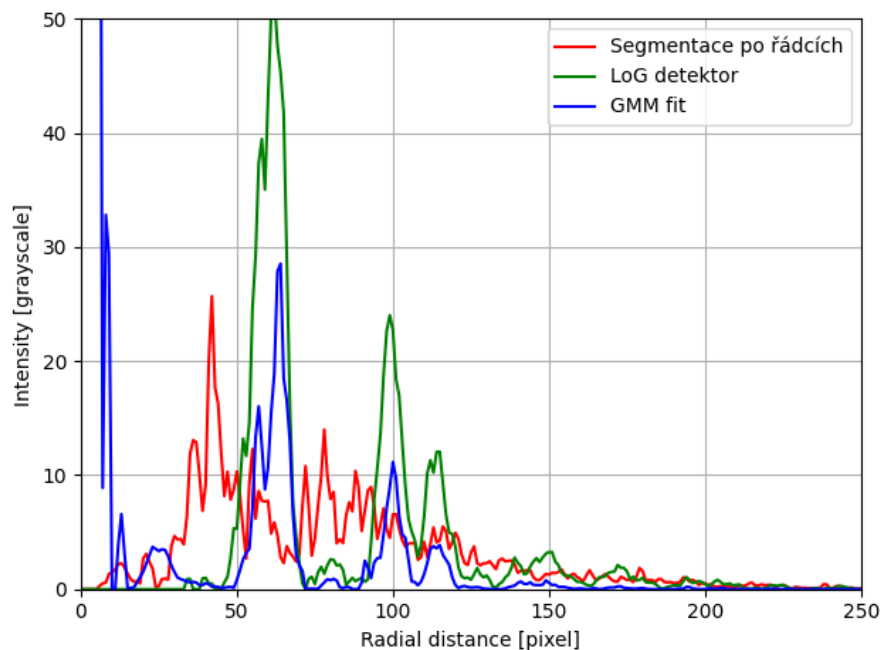


Obrázek 6.10: Srovnání práškových difraktogramů vzorku krystalu LaF_3 (a) bez zpracování, (b) dekonvoluce Richardson Lucyho algoritmem, (c) fitování GMM do snímků, (d) segmentace prahováním řádků v polárních souřadnicích, (e) LoG detektor, (f) U-Net segmentace.

I u tohoto vzorku se vyskytují problémy, a to i přes naše nové metody. Máme potíže se správným vycentrováním snímků před zpracováním, zejména v kombinaci s maskováním centrálního maxima ztrácíme významnou část prvních soustředných kružnic v difraktogramu. V případě, že od maskování upustíme, nastane problém s velkým množstvím falešných detekcí poblíž středu. Také U-Net, který v předchozích případech vygeneroval práškový difraktogram alespoň vizuálně blízký očekávanému výsledku, u tohoto vzorku kompletně selhává. Při pohledu na profil intenzit 6.11 a 6.12 zjistíme, že segmentace prahováním po řádcích zde taktéž selhala, výsledný profil nelze dále zpracovat. Jediný profil, který vypadá nadějně je ten vygenerovaný z difraktogramu získaného LoG detektorem.

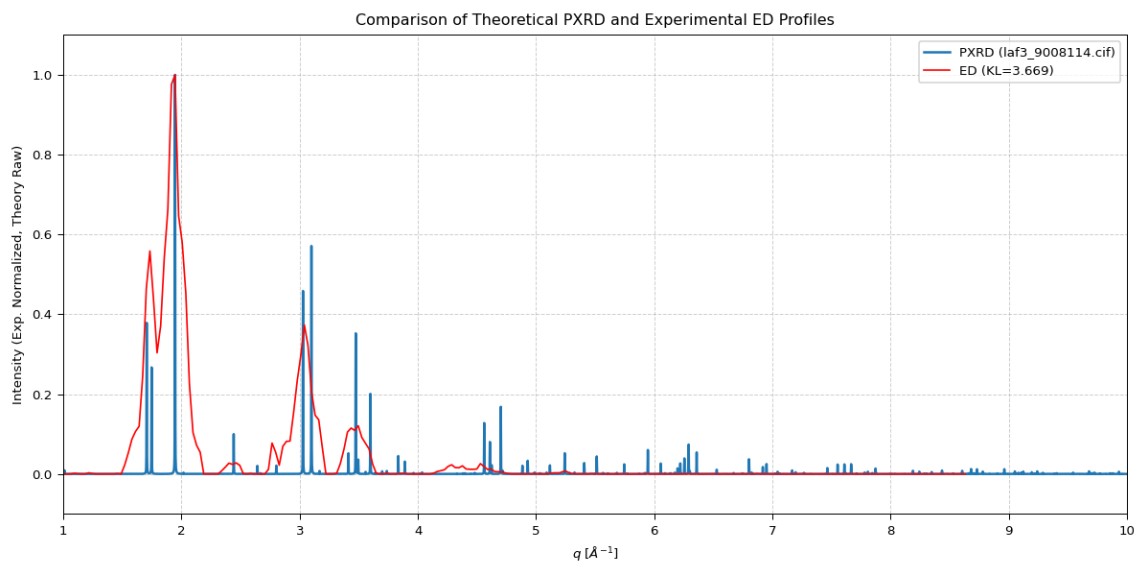


Obrázek 6.11: Srovnání profilu intenzit práškových difraktogramů vzorku LaF_3 získaných všemi diskutovanými metodami.

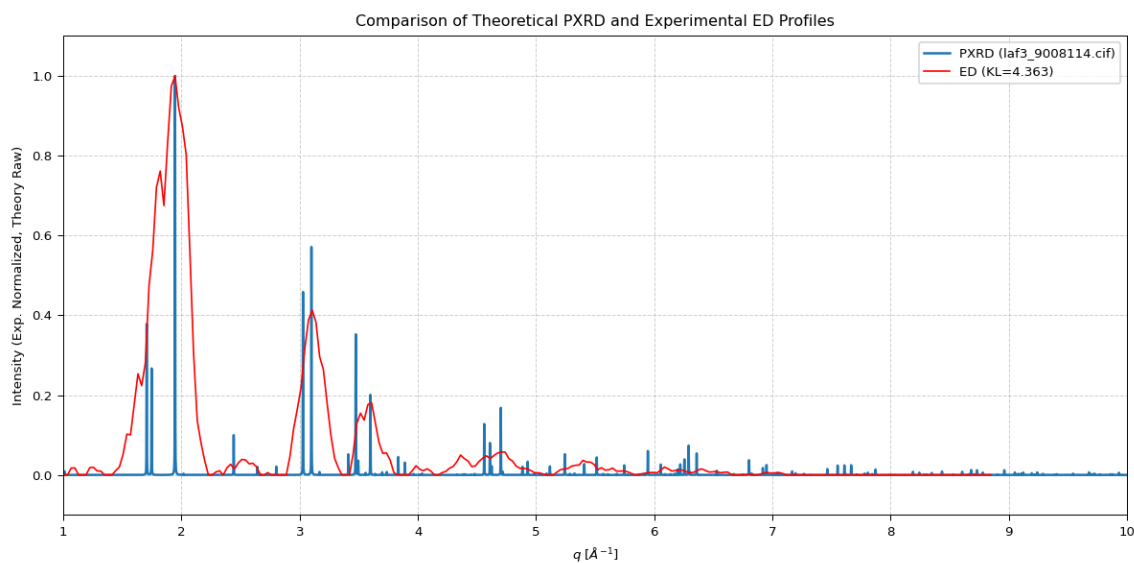


Obrázek 6.12: Srovnání profilu intenzit práškových difraktogramů vzorku LaF_3 , získaných GMM fitováním, LoG detektorem a segmentací po řádcích.

Dále vygenerujeme srovnání s teoretickými profily pro difraktogram získaný pomocí GMM 6.13 fitu a LoG detektorem 6.14.



Obrázek 6.13: Srovnání profilu intenzit práškového difraktogramu vzorku LaF_3 , získaného fitováním GMM, s teoretickým profilem



Obrázek 6.14: Srovnání profilu intenzit práškového difraktogramu vzorku LaF_3 , získaného LoG detektorem, s teoretickým profilem

Z těchto srovnání můžeme učinit několik pozorování. Stále platí, že LoG detektorem zachytíme i peaky v odlehlejších částech difraktogramů a zachytíme větší část energie jednotlivých maxim. V tomto konkrétním případě má ale metoda fitování GMM jednu výhodu. Lépe odděluje peaky blízko středu snímku. U LoG detektoru nemůžeme oddělit prvních pár maxim. Zda je zásadnější zachytit maxima vzdálenější od středu snímku, nebo přesněji oddělit jednotlivá maxima je otázkou pro krystalografy. V každém případě námi navržená metoda funguje a výsledek odpovídá teoretickým očekáváním.

Kapitola 7

Závěr

V této práci jsme se obeznámili s novou analytickou metodou 4DSTEM/PNBD, vyvíjenou ve spolupráci s UTIA, UMCH a UPT. Naším cílem bylo seznámit se s aktuálně používanými postupy a navrhnout nové metody pro rekonstrukci a vylepšení kvality práškových difraktogramů. Navázali jsme na koncepty a myšlenky popsané v [9], kde se ukázalo, že segmentace by mohla představovat lepší přístup k rekonstrukci difraktogramů. Navrhli jsme 2 klasické metody segmentace a jednu metodu hlubokého učení.

Dvě klasické metody, tedy segmentace prahováním po řádcích a LoG, detektor se ukázaly jako velmi účinné. Rekonstrukce pomocí těchto metod funguje i pro vzorky, které hůře difraktují elektrony. Segmentace prahováním selhala až u vzorku LaF_3 , který je velmi obtížně zpracovatelný. Ukázalo se také několik problémů a potenciálních zlepšení pro klasický přístup rekonstrukce metodami zpracování obrazu. Korektní vycentrování snímků je naprosto zásadní. Korektně vycentrovat snímek je jeden z nejpodstatnějších kroků celé rekonstrukce. To je dáno faktem, že snímky sčítáme. Pokud nejsou všechny vycentrovány, typické soustředné kružnice práškového difraktogramu se nutně rozmažou a my poté nedokážeme oddělit jednotlivá maxima v profilu intenzit. Stejně tak důležité je správně lokalizovat jednotlivá maxima a to ze stejného důvodu. V tomto směru má celá knihovna STEMDIFF jedno zásadní omezení. Nepracuje se sub-pixelovou přesností. Při rekonstrukcích dochází k interpolaci středu snímku i těžiště jednotlivých maxim na nejbližší pixel. Toto zvýšení přesnosti by mělo být v budoucnu blíže prozkoumáno.

Dále jsme se věnovali možnosti segmentace pomocí metod hlubokého učení. Naimplementovali jsme síť typu U-Net a natrénovali ji na syntetických snímcích. Pro tento účel jsme vytvořili dva různé generátory syntetických difraktogramů. První byl založen na myšlence, že stačí uhádnout charakter snímků - tedy rozložení šumu, intenzitu pozadí, poměr intenzit difrakčních maxim atp. Poté, když budeme tyto parametry nahodile měnit, pokryjeme velkou škálu snímků blízkých těm skutečným. Jak se ukázalo, tento přístup je naprosto nedostačující. Neuronová síť se učila bez potíží, ale výsledky inference na skutečných datech byly nevyhovující a v praxi nepoužitelné. Kvůli tomu jsme vytvořili simulátor syntetických difraktogramů, který odpovídá fyzikálnímu procesu difrakce. Mohli jsme si takto generovat realistické difraktogramy. Výsledky s tímto generátorem byly výrazně lepší. Tento fakt je zajímavý i z pohledu strojového učení. Přidání reálné struktury do syntetických difraktogramů značně vylepšilo výsledky na skutečných datech. Ani přes toto zlepšení výsledné práškové difraktogramy nebyly použitelné pro další analýzu. Tento přístup ale má zjevně potenciál; další výzkum by se měl zaměřit na lepší reprezentaci skutečných dat v trénovací množině. Jedním z potenciálních řešení by bylo zkombinovat syntetické snímky se skutečnými, ručně anotovanými. Tato metoda poskytuje jednu zásadní výhodu - rychlost zpracování.

Analýza jednoho vzorku o tisíci snímcích je otázkou jen pár sekund.

V experimentální části jsme všechny navržené metody otestovali na třech krystalických vzorcích. Nové metody segmentace po řádcích a LoG detektor překonávají dosud nejlepší metodu segmentace fitováním Gaussovske směsi na všech vzorcích vyjma jednoho. U vzorku LaF_3 segmentace prahováním po řádcích selhala úplně, LoG detektor dal srovnatelný výsledek s fitováním GMM. Ve všech případech segmentace pomocí U-Netu selhala. V tomto směru je zapotřebí další výzkum a více experimentů. Aktuální doporučení pro uživatele STEMDIFF knihovny je použít metodu LoG detektoru. Ve všech případech jsme touto metodou získali nejlepší výsledek a je výrazně rychlejší než fitování pomocí GMM, které doporučujeme použít v případě, kdy LoG detektor selže.

Všechny provedené experimenty naznačují, že segmentace je lepší řešení, než donedávna používaná dekonvoluce. U některých metod je stále potřeba v některých případech experimentovat s nastavením parametrů, ale kompletně se vyhneme odhadování rozptylové funkce a dekonvolučním artefaktům.

Literatura

- [1] ŠLOUF, Miroslav. *Transmission Electron Microscopy of Polymer Materials* [online]. Dostupné z: https://www.imc.cas.cz/vyuka/slouf/EM-SPM/PREDN/em_2.pdf [cit. 2024-08-12].
- [2] BRAGG, William Henry a William Lawrence BRAGG. The reflection of X-rays by crystals. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A*, 1913, 88: 428–438. <https://doi.org/10.1098/rspa.1913.0040>
- [3] The Editors of Encyclopaedia Britannica. Bragg law. *Encyclopedia Britannica* [online]. 2024-08-09. Dostupné z: <https://www.britannica.com/science/Bragg-law> [cit. 2024-08-12].
- [4] VALVODA, Václav, POLCAROVÁ, Milena a LUKÁČ, Pavel. *Základy strukturní analýzy*. 1. vyd. Praha: Univerzita Karlova, 1992. 489 s. ISBN 807066648X.
- [5] GIACOVAZZO, Carmelo a kol. *Fundamentals of Crystallography*. 3rd ed. Oxford: Oxford University Press, 2011. <https://doi.org/10.1093/acprof:oso/9780199573653.001.0001> [cit. 2024-08-05].
- [6] DE BROGLIE, Louis. Waves and quanta. *Nature*, 1923, 112(2815): 540.
- [7] SLOUF, Miroslav; SKOUPY, Radek; PAVLOVA, Eva; KRZYZANEK, Vladislav. High Resolution Powder Electron Diffraction in Scanning Electron Microscopy. *Materials*, 2021, 14(24): 7550. <https://doi.org/10.3390/ma14247550>
- [8] SLOUF, Miroslav; SKOUPY, Radek; PAVLOVA, Eva; KRZYZANEK, Vladislav. Powder Nano-Beam Diffraction in Scanning Electron Microscope: Fast and Simple Method for Analysis of Nanoparticle Crystal Structure. *Nanomaterials*, 2021, 11(4): 962. <https://doi.org/10.3390/nano11040962>
- [9] RENDL, David. *Rekonstrukce 2D difraktogramů v transmisní elektronové mikroskopii*. 2024.
- [10] RICHARDSON, W. Bayesian-based iterative method for image restoration. *Journal of the Optical Society of America*, 1972, 62: 55–59.
- [11] LUCY, L. An iteration technique for the rectification of observed distributions. *Astronomical Journal*, 1974, 79: 745–754.
- [12] LANGE, K. Convergence of EM reconstruction algorithm with Gibbs smoothing. *IEEE Transactions on Medical Imaging*, 1990, 9(4): 439–446.
- [13] DEY, Nicolas et al. Deconvolution using Richardson-Lucy Algorithm with Total Variation Regularization. *INRIA Research Report*, 2004, RR-5272: 71. <https://hal.inria.fr/inria-00070726>

- [14] AROYO, Mois I.; MÜLLER, Ulrich; WONDRATSCHEK, Hans. Historical Introduction. *International Tables for Crystallography*, 2006, A1(1.1): 2–5. <https://doi.org/10.1107/97809553602060000537>
- [15] COWLEY, J. M. *Diffraction Physics*. 2nd rev. ed. Amsterdam: North-Holland Publishing Company, 1981. ISBN 0444861211.
- [16] DEBYE, Peter. Interferenz von Röntgenstrahlen und Wärmebewegung. *Annalen der Physik*, 1913, 348(1): 49–92. <https://doi.org/10.1002/andp.19133480105>
- [17] WALLER, Ivar. Zur Frage der Einwirkung der Wärmebewegung auf die Interferenz von Röntgenstrahlen. *Zeitschrift für Physik A*, 1923, 17(1): 398–408. <https://doi.org/10.1007/BF01328696>
- [18] LEVINE, E.; BELL, W. L.; THOMAS, G. Further applications of Kikuchi diffraction patterns; Kikuchi maps. *Journal of Applied Physics*, 1966, 37(5): 2141–2148. <https://doi.org/10.1063/1.1708749>
- [19] BRESENHAM, J. E. Algorithm for computer control of a digital plotter. *IBM Systems Journal*, 1965, 4(1): 25–30. <https://doi.org/10.1147/sj.41.0025>
- [20] STERNBERG, Stanley R. Biomedical image processing. *Computer*, 1983, 1: 22–34. <https://doi.org/10.1109/MC.1983.1654163>
- [21] WANG, G.; WANG, Y.; LI, H.; et al. Morphological background detection and illumination normalization of text image with poor lighting. *PLoS ONE*, 2014, 9(11): e110991. <https://doi.org/10.1371/journal.pone.0110991>
- [22] LINDEBERG, Tony. Feature Detection with Automatic Scale Selection. *International Journal of Computer Vision*, 1998, 30: 79–116. <https://doi.org/10.1023/A:1008045108935>
- [23] LONG, Jonathan; SHELHAMER, Evan; DARRELL, Trevor. Fully Convolutional Networks for Semantic Segmentation [online]. Dostupné z: <https://arxiv.org/abs/1411.4038> [cit. 2025-04-29].
- [24] RONNEBERGER, Olaf; FISCHER, Philipp; BROX, Thomas. U-Net: Convolutional Networks for Biomedical Image Segmentation [online]. Dostupné z: <https://arxiv.org/abs/1505.04597> [cit. 2025-04-29].