

Reconstruction de spectres-images partiellement échantillonnés en microscopie EELS

Etienne MONIER¹, Thomas OBERLIN¹, Nathalie BRUN², Nicolas DOBIGEON¹

¹Université de Toulouse, IRIT/INP ENSEEIHT, 31071 Toulouse Cedex, France

²Laboratoire de Physique des Solides, CNRS UMR 8502, Univ. Paris-Sud, Univ. Paris-Saclay, 91405 Orsay Cedex, France
prenom.nom@enseeiht.fr, prenom.nom@u-psud.fr

Résumé – En microscopie électronique, un problème récurrent est de trouver le bon compromis entre un bon rapport signal-sur-bruit et une dose d'électrons suffisamment faible pour ne pas endommager l'échantillon. La microscopie en transmission à balayage permettant l'acquisition d'un cube de données spatiales et spectrales possède un atout non négligeable : la capacité d'acquérir des pixels isolés, ouvrant ainsi la porte à des schémas d'acquisition partiels couplés à une étape de reconstruction des données. Ainsi, une méthode de reconstruction basée sur l'hypothèse de faible rang dans le domaine spectral et de régularité spatiale est présentée, puis mise en œuvre sur des données réalistes.

Abstract – A recurrent problem encountered in electron microscopy is to achieve a trade-off between a correct signal-to-noise ratio and a non-destructive beam. As the scanning transmission electron microscopy can acquire spatial and spectral datacubes, one of its main advantages is the ability to acquire pixel spectra at only some spatial locations. As a consequence, partial acquisition schemes are conceivable, provided a reconstruction of the full data cube is conducted as a post-processing step. This paper proposed a reconstruction approach of EELS spectrum-images which exploits the spectral redundancy and the spatial smoothness of the image. The performance of proposed scheme is illustrated thanks to experiments conducted on a realistic dataset.

1 Introduction

La microscopie en transmission à balayage (STEM) permet d'acquérir plusieurs signaux mono- et multi-canaux mesurés simultanément pour chaque position du capteur. Les modalités d'acquisition sont alors la cathodoluminescence (CL), la spectroscopie des pertes d'énergie (EELS) et le fond noir annulaire à grand angle (HAADF). Toutefois, dans certains cas, l'échantillon fragile peut souffrir de détériorations, en particulier lorsqu'il s'agit de tissus biologiques ou de structures moléculaires. Afin d'éviter ces altérations, il est nécessaire de réduire le temps d'exposition au faisceau ou alors l'intensité de celui-ci, ce qui a pour effet de réduire le rapport signal-sur-bruit de manière significative. Une alternative consiste à n'acquérir qu'une partie des spectres en quelques positions spatiales, principalement situées dans des régions d'intérêt. Une étape de post-traitement est alors nécessaire pour reconstruire ensuite le cube de données complet, appelé spectre-image. De tels schémas d'acquisition ont été implémentés sur le microscope STEM VG HB 501 opéré par le Laboratoire de Physique des Solides (LPS, Orsay, France), le faisceau suivant un chemin aléatoire prédéterminé. La reconstruction de l'image HAADF (qui est 2D) est simple et repose sur des méthodes de reconstruction bien connues (minimisation de l'énergie de Sobolev ou de la variation totale). Néanmoins, la reconstruction du spectre-image associé, composée d'un grand nombre de bandes d'énergie, rend ce problème très coûteux en mémoire et en temps de calcul. Récemment, des travaux en traitement du signal et de l'image ont introduit de nouveaux algorithmes dans le cadre de la théorie de l'échantillonnage compressé. Ceux-ci rendent

possible une reconstruction totale de l'objet d'intérêt partiellement échantillonné dès lors qu'il est parcimonieux dans un espace de représentation approprié et que l'acquisition aléatoire est incohérente avec cet espace. Ce principe a été mis en œuvre dans des champs applicatifs variés, fournissant par exemple des schémas d'acquisition rapides en IRM [1] ou en imagerie ultrasonore [2]. Des applications en microscopie basées sur ces travaux ont également été proposées [3, 4]. Cependant, dans le cas de la microscopie EELS, l'échantillonnage partiel des spectres-images conduit à l'acquisition de tout le spectre EELS en quelques positions spatiales, rendant difficile le recours au paradigme de l'échantillonnage compressé. Plus généralement, au cours de la dernière décennie, de nombreuses avancées algorithmiques ont été proposées afin de résoudre des problèmes inverses de grande taille par optimisation convexe. Ces résolutions reposent par ailleurs sur l'introduction de fonctions de pénalisation permettant de régulariser le caractère mal posé du problème. Sans pour autant satisfaire les hypothèses souvent restrictives de l'échantillonnage compressé, il est ainsi possible de réaliser des tâches génériques de complétion [5], de super-résolution [6] ou de fusion [7] rencontrées en traitement d'image. Dans cet article, nous nous inscrivons dans cette démarche en développant un algorithme de reconstruction qui exploite à la fois la forte redondance spectrale et la régularité spatiale des spectres-images EELS.

L'article est organisé comme suit. Les définitions, le problème d'optimisation proposé et sa mise en œuvre seront présentés en section 2. La section 3 présentera les données utilisées et les simulations réalisées afin de valider cette implémentation. La section 4 viendra enfin conclure cet article.

2 Problème, hypothèses et résolution

2.1 Formulation du problème

Notons \mathbf{X} la matrice de taille $N_c \times N_p$ qui contient les N_p spectres composés de N_c canaux d'énergie correspondant à l'image EELS à reconstruire. Chaque ligne de cette matrice contient les $N_p = n_r \times n_c$ valeurs d'énergie associées à un canal de l'image et ordonnées lexicographiquement (n_r et n_c sont respectivement les nombres de ligne et de colonne du spectre-image). Chaque colonne contient un spectre d'un pixel dans N_c bandes d'énergies. Le LPS ayant implémenté un mode d'échantillonnage spatial aléatoire (qui est un fonctionnement inhabituel pour ce type d'acquisition), nous supposons qu'une acquisition partielle de ce spectre-image est réalisé. Nous définissons alors $\mathcal{I} \subset \llbracket 1, N_p \rrbracket$ l'ensemble des indices correspondant aux positions spatiales des pixels échantillonnés et notons $r = |\mathcal{I}|/N_p$ le taux de pixels échantillonnés. La matrice \mathbf{Y} des mesures peut alors être obtenue suivant le modèle

$$\mathbf{Y} = \mathbf{A} \odot \mathbf{X} + \mathbf{B} \quad (1)$$

où \odot est le produit de Hadamard, \mathbf{B} est un bruit supposé additif, gaussien, indépendant, d'écart-type σ et \mathbf{A} est un masque binaire de même taille que \mathbf{X} tel que

$$a_{cp} = \begin{cases} 1 \quad \forall c \in \llbracket 1, N_c \rrbracket & \text{si } p \in \mathcal{I} \\ 0 \quad \forall c \in \llbracket 1, N_c \rrbracket & \text{sinon} \end{cases} \quad (2)$$

Le problème de reconstruction consiste alors à fournir un spectre-image $\hat{\mathbf{X}}$ proche de \mathbf{X} .

2.2 Définition de la fonction objectif

Suite au caractère mal posé du problème, les observations fournies par \mathbf{Y} ne peuvent suffire à estimer \mathbf{X} . Des hypothèses sont également requises afin d'assurer une reconstruction correcte. Le critère à optimiser, comprenant trois termes, est introduit dans les paragraphes qui suivent.

Attache aux données L'hypothèse d'un bruit blanc gaussien permet de définir une mesure de l'erreur au modèle par le terme $\frac{1}{2} \|\mathbf{A} \odot (\mathbf{Y} - \mathbf{X})\|_F^2$.

Régularité spatiale Une hypothèse classique en traitement de l'image consiste à supposer l'image spatialement lisse. L'échantillon imagé présente en effet des zones homogènes contiguës au sein desquelles l'hypothèse de régularité spatiale est raisonnable. C'est pourquoi nous avons choisi de minimiser l'énergie de Sobolev $\frac{1}{2} \|\mathbf{X}\mathbf{D}\|_F^2$ où \mathbf{D} est l'opérateur de différences finies selon les directions spatiales du spectre-image.

Structure faible rang Nous utiliserons également une hypothèse classique en imagerie multi-bande supposant une structure de rang faible du cube de données \mathbf{X} [8, 9]. Cette hypothèse a par exemple été exploitée pour l'analyse de spectres-images EELS dans [10]. La fonction de rang étant non-convexe,

nous choisissons une relaxation convexe populaire dans la littérature, la norme nucléaire $\|\mathbf{X}\|_*$, définie comme la norme ℓ_1 des valeurs singulières de \mathbf{X} [11].

Problème d'optimisation A partir des hypothèses introduites ci-dessus, la reconstruction du spectre-image \mathbf{X} est formulé comme le problème d'optimisation suivant

$$\hat{\mathbf{X}} = \min_{\mathbf{X}} \frac{1}{2} \|\mathbf{A} \odot (\mathbf{Y} - \mathbf{X})\|_F^2 + \frac{\lambda}{2} \|\mathbf{X}\mathbf{D}\|_F^2 + \mu \|\mathbf{X}\|_* \quad (3)$$

où λ et μ sont des paramètres permettant d'ajuster le poids de chacune des régularisations spatiale et spectrale considérées.

2.3 Algorithme et mise en œuvre

En pratique, la résolution du problème d'optimisation (3) est obtenue en utilisant l'algorithme FISTA [12]. En effet, la fonctionnelle peut être décomposée en la somme de la fonction lisse et dérivable $f(\mathbf{X}) = \frac{1}{2} \|\mathbf{A} \odot (\mathbf{Y} - \mathbf{X})\|_F^2 + \frac{\lambda}{2} \|\mathbf{X}\mathbf{D}\|_F^2$ et de la fonction convexe mais non-dérivable $g(\mathbf{X}) = \mu \|\mathbf{X}\|_*$. En ce qui concerne la fonction f , la dérivée est simplement

$$\nabla f(\mathbf{X}) = -\mathbf{A} \odot (\mathbf{Y} - \mathbf{X}) - \lambda \mathbf{X} \mathbf{\Delta} \quad (4)$$

où $\mathbf{\Delta} = -\mathbf{D}\mathbf{D}^T$ est l'opérateur laplacien discret. L'opérateur proximal associé à $g(\cdot)$ est

$$\text{prox}_{\mu \|\mathbf{X}\|_*/L}(\mathbf{X}) = \mathbf{U} \bar{\Sigma} \mathbf{V}^H \quad (5)$$

où \mathbf{U} , Σ , \mathbf{V} est la décomposition en valeur singulière de \mathbf{X} , $\Sigma = \text{diag}(\sigma_i)$, $\bar{\Sigma} = \text{diag}(\bar{\sigma}_i)$, $\bar{\sigma}_i = \max[\sigma_i - \mu/L, 0]$ (ce calcul est équivalent à un seuillage doux de σ_i puisque cette dernière est non négative) et $L = 1 + 8\lambda$ est un majorant de la constante de Lipschitz de ∇f . L'algorithme résultant de l'application de FISTA est appelé algorithme de Sobolev Norme Nucléaire (SN²) et est résumé par l'Algo. 1.

Algorithme 1 : Algorithme SN²

Données : observations \mathbf{Y} ; hyperparamètres λ et μ .

Initialisation : $\mathbf{X}^{(0)}$, $\mathbf{Z}^{(0)}$, $n = 0$.

repeat

$$\mathbf{X}^{(n+1)} = \text{prox}_{\mu \|\mathbf{X}\|_*/L}(-\mathbf{A} \odot (\mathbf{Y} - \mathbf{Z}^{(n)}) - \lambda \mathbf{Z}^{(n)} \mathbf{\Delta})$$

$$t_{n+1} = \frac{1 + \sqrt{1 + 4t_n^2}}{2}$$

$$\mathbf{Z}^{(n+1)} = \mathbf{X}^{(n)} + \left(\frac{t_n - 1}{t_{n+1}}\right) (\mathbf{X}^{(n+1)} - \mathbf{X}^{(n)})$$

$$n \leftarrow n + 1$$

until convergence

Résultat : Le spectre-image reconstruit $\hat{\mathbf{X}} = \mathbf{X}^{(n)}$

3 Résultats de simulations

3.1 Spectre-image synthétique

Afin de tester l'algorithme SN² proposé, un spectre-image synthétique de taille $n_c = n_r = 48$ et $N_c = 1340$ a été généré

suivant un modèle de mélange linéaire de cinq spectres réels issus d'acquisitions EELS (l'échantillon étant un tissu biologique). Un bruit blanc gaussien a été ajouté, fournissant un rapport signal-sur-bruit moyen de 10dB. Les spectres et les distributions spatiales de ces éléments sont représentés sur les Figures 1 et 2 respectivement. Ces premiers présentent des sauts (pics) caractéristiques d'éléments chimiques particuliers présents dans l'échantillon. Le plus visible est celui du carbone (fortement présent dans les tissus), suivi d'éléments plus discrets (oxygène, azote, etc) dont les sauts peuvent être noyés dans le bruit. Les mesures sont obtenues en échantillonnant partiellement ce spectre-image synthétique avec un taux $r = 40\%$.

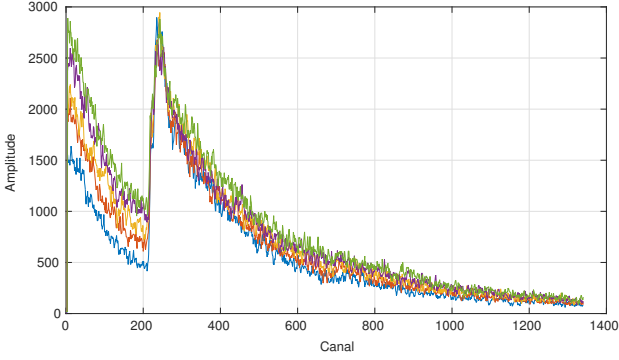


FIGURE 1 – Spectres EELS réels.

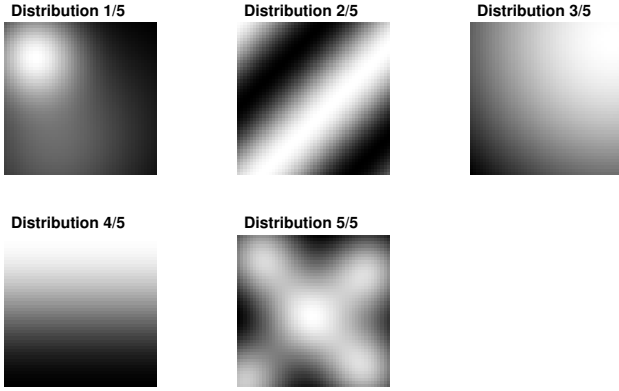


FIGURE 2 – Répartitions spatiales des composants.

3.2 Résultats de reconstruction

La Figure 3 représente les images initiale, observée et reconstruite dans une bande d'énergie donnée (#618) pour les valeurs optimales des paramètres ($\lambda = 0.1$ et $\mu = 10^4$). L'image reconstruite avec $\mu = 0$ est également représentée. Elle correspond à une reconstruction opérée bande par bande et qui n'exploiterait donc pas la structure de rang faible du spectre-image. L'algorithme proposé fournit une nette amélioration par rapport à cette reconstruction exploitant uniquement la régularité spatiale de l'image. Considérer le terme de pénalisation en

norme nucléaire améliore donc sensiblement les résultats. Se référer à [13] pour plus de détails.

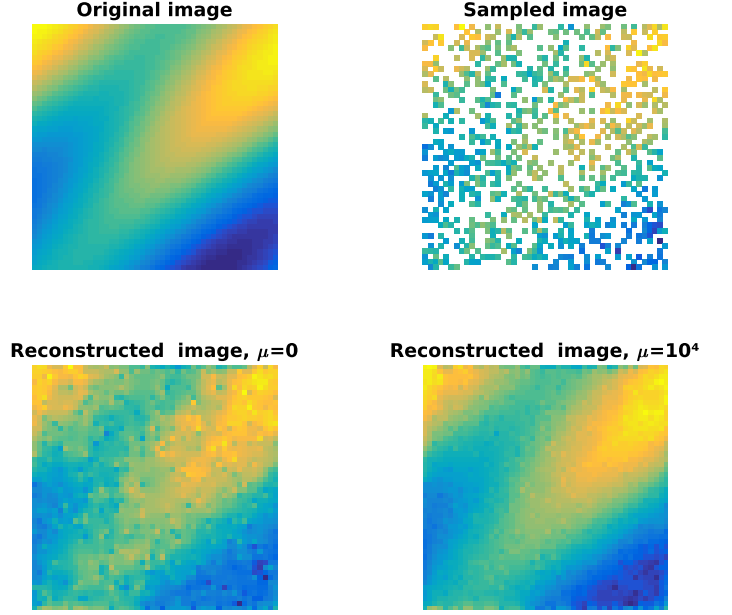


FIGURE 3 – Images originale, observée et reconstruite dans la bande #618 pour $\lambda = 0.1$ et $\mu \in \{0, 10^4\}$.

3.3 Impact du réglage des paramètres λ et μ

Afin d'évaluer l'effet des paramètres λ et μ sur la reconstruction, l'algorithme proposé a été appliqué pour un ensemble de valeurs de ces paramètres. L'erreur quadratique moyenne (EQM) définie par

$$\text{EQM}(\mathbf{X}, \hat{\mathbf{X}}) = \frac{\|\mathbf{X} - \hat{\mathbf{X}}\|_F^2}{\|\mathbf{X}\|_F^2} \quad (6)$$

a été mesurée pour chaque jeu de paramètres et est représentée sur la Figure 4.

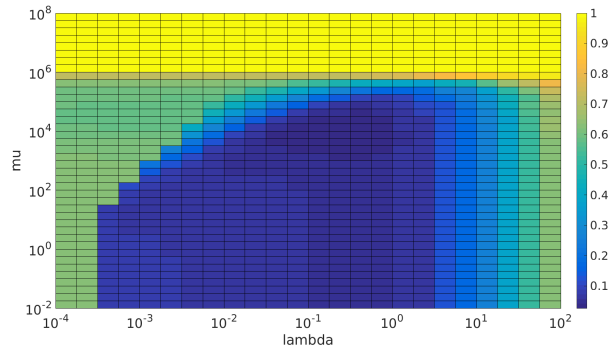


FIGURE 4 – EQM pour différentes valeurs de λ et μ .

Comportement $\mu \rightarrow \infty$ En étudiant l'impact de μ , nous observons un plateau pour μ supérieur à 10^6 qui correspond à

une zone où le spectre-image reconstruit par l'algorithme (en une seule itération) est identiquement égal à un spectre moyen en toute position spatiale. En effet, si l'on observe l'opérateur proximal (5), nous observons que pour $\mu > L \max_i [\sigma_i]$, l'ensemble des valeurs singulières de \mathbf{X} sont portées à 0 dès la première itération. Le calcul montre, en effet que $L \max_i [\sigma_i] = 1.00 \times 10^6$. Dans ce cas, l'EQM vaut 1.

Comportement $\mu \rightarrow 0$ Pour μ proche de 0, le problème d'optimisation, comme indiqué précédemment, se réduit à un problème de minimisation d'un critère constitué uniquement par les termes d'attache aux données et d'énergie de Sobolev. Cette méthode de résolution simple semblait donner des résultats visuellement moins satisfaisants. Les résultats quantitatifs confirment cette observation puisque l'EQM est alors deux fois plus importante pour $\mu = 0$ que pour $\mu = 10^4$.

Comportement $\lambda \rightarrow 0$ Pour λ proche de 0, le terme de régularisation spatiale tend à disparaître, ne laissant qu'une image très peu lisse et visuellement non satisfaisante (voir Figure 5).

Comportement $\lambda \rightarrow \infty$ Pour λ grand, la remarque inverse peut être formulée : l'image est trop lisse et des informations spatiales tendent à disparaître (voir Figure 5).

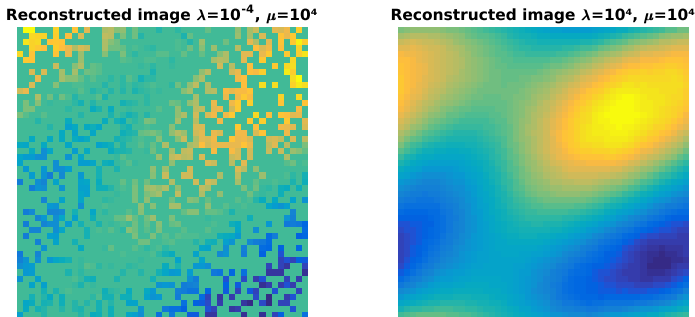


FIGURE 5 – Images reconstruites dans la bande #618 pour $\lambda \in \{10^{-4}, 10^4\}$ et $\mu = 10^4$.

Discussion finale Pour conclure sur ces résultats, nous observons d'abord que la prise en compte de la structure de rang faible du spectre-image améliore significativement la reconstruction. Cependant, le choix des paramètres de reconstruction doit être judicieux alors que la seule information concernant ce choix repose sur la valeur maximale des valeurs singulières de $\mathbf{Z}^{(n)}$ pouvant être rencontrées au cours des itérations (afin d'obtenir une condition sur μ). Compte tenu du profil de l'EQM observée sur la Figure 4, il apparaît tout de même qu'une large plage de valeurs du couple (λ, μ) fournit des résultats tout à fait satisfaisants.

4 Conclusion

Cet article a présenté un algorithme de reconstruction de spectres-images à partir de données partielles et bruitées acquises en microscopie EELS. En particulier, l'approche proposée tire profit d'une hypothèse vérifiée en pratique : une forte corrélation spectrale induit une structure faible rang du cube de données. L'algorithme a pu être validé sur des données synthétiques mais réalistes et les résultats semblent prometteurs. En effet, les simulations montrent que l'ajout d'un terme visant à promouvoir ce caractère de rang faible améliore significativement la reconstruction. Les perspectives de ce travail viseront à valider l'algorithme proposé sur des spectres-images EELS réels.

Références

- [1] C. Boyer, P. Weiss *et al.*, "An algorithm for variable density sampling with block-constrained acquisition," *SIAM J. Imag. Sci.*, vol. 7, no. 2, pp. 1080–1107, 2014.
- [2] C. Quinsac, N. Dobigeon *et al.*, "Bayesian compressed sensing in ultrasound imaging," in *Proc. IEEE Int. Workshop Comput. Adv. Multi-Sensor Adaptive Process. (CAMSAP)*, San Juan, Puerto Rico, Dec. 2011, pp. 101–104.
- [3] A. Béché, B. Goris *et al.*, "Compressed sensing for beam sensitive materials imaging in Scanning Transmission Electron Microscopy," in *Proc. European Microscopy Congress*, Weinheim, Germany, dec 2016, pp. 340–341.
- [4] D. Muecke-Herzberg, P. Abellan *et al.*, "A Compressive Sensing based acquisition design for quantitative ultra-low dose high-resolution imaging and spectroscopy in the STEM," in *Proc. European Microscopy Congress*, Weinheim, Germany, dec 2016, pp. 324–325.
- [5] M. Bertalmio, G. Sapiro *et al.*, "Image inpainting," in *Proc. Annual Conf. Computer Graphics Interactive techniques*, 2000, pp. 417–424.
- [6] N. Zhao, Q. Wei *et al.*, "Fast single image super-resolution using a new analytical solution for $\ell_2 - \ell_2$ problems," *IEEE Trans. Image Process.*, vol. 25, no. 8, pp. 3683–3697, Aug. 2016.
- [7] Q. Wei, J. Bioucas-Dias *et al.*, "Hyperspectral and multispectral image fusion based on a sparse representation," *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, vol. 53, no. 7, pp. 3658–3668, 2015.
- [8] J. M. Bioucas-Dias, A. Plaza *et al.*, "Hyperspectral unmixing overview : Geometrical, statistical, and sparse regression-based approaches," *IEEE J. Sel. Topics Appl. Earth Observations Remote Sens.*, vol. 5, no. 2, pp. 354–379, April 2012.
- [9] N. Dobigeon, Y. Altmann *et al.*, "Linear and nonlinear unmixing in hyperspectral imaging," in *Resolving spectral mixtures – With application from ultrafast spectroscopy to super-resolution imaging*, ser. Data Handling in Science and Technology, C. Ruckebusch, Ed. Oxford, U.K. : Elsevier, 2016.
- [10] N. Dobigeon and N. Brun, "Spectral mixture analysis of EELS spectrum-images," *Ultramicroscopy*, vol. 120, pp. 25–34, Sept. 2012.
- [11] B. Recht, M. Fazel *et al.*, "Guaranteed minimum-rank solutions of linear matrix equations via nuclear norm minimization," *SIAM Review*, vol. 52, no. 3, pp. 471–501, 2010.
- [12] A. Beck and M. Teboulle, "A fast iterative shrinkage-thresholding algorithm for linear inverse problems," *SIAM J. Imag. Sci.*, vol. 2, no. 1, pp. 183–202, 2009.
- [13] E. MONIER, T. Oberlin *et al.*, "Reconstruction of partially sampled multi-band images - Application to STEM-EELS imaging," June 2017. [Online]. Available : <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-01552138>