

同步辐射红外共聚焦谱学三维成像重建算法研究

朱化春¹, 佟亚军¹, 蒋友好^{2,3}, 马力³, 吉特¹, 彭蔚蔚¹, 陈敏^{1*}, 肖体乔¹

¹中国科学院上海应用物理研究所, 上海 201204;

²同济大学电子与信息工程学院控制科学与工程系, 上海 201804;

³上海市中医药大学附属普陀医院, 上海 200062

摘要 为获取物质内部成分的三维分布信息, 研究了基于同步辐射红外光源的共聚焦三维成像重建算法。采用单点探测器扫描成像的方式, 根据同步辐射红外谱学显微共聚焦三维成像的原理及非线性特性, 建立了同步辐射红外谱学显微共聚焦三维成像模型; 根据该模型的特点建立测试样品的模型, 模拟了红外谱学共聚焦三维成像测试, 得到了共聚焦三维成像的测试数据; 分别使用 Levenberg-Marquardt 算法和改进型高斯-牛顿算法对使用前向模型模拟采集得到的结果进行重建。结果表明, 前向模型中未加入误差时, Levenberg-Marquardt 算法可以重建样品的三维信息, 在前向模型中加入 1% 误差时, Levenberg-Marquardt 算法重建得到的结果与实际结果偏差较大, 而改进型高斯-牛顿算法可以重建样品的三维信息。

关键词 光谱学; 同步辐射红外光源; 共聚焦谱学三维成像; 三维成像重建算法

中图分类号 O436 **文献标识码** A

doi: 10.3788/AOS201737.1230002

3D Imaging Reconstruction Algorithm for Synchrotron Radiation Infrared Confocal Spectroscopy

Zhu Huachun¹, Tong Yajun¹, Jiang Youhao^{2,3}, Ma Li³, Ji Te¹,
Peng Weiwei¹, Chen Min¹, Xiao Tiqiao¹

¹Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201204, China;

²Department of Control Science and Engineering, School of Electronics and Information Engineering,
Tongji University, Shanghai 201804, China;

³Putuo Hospital Affiliated to Shanghai University of Traditional Chinese Medicine, Shanghai 200062, China

Abstract In order to achieve the 3D distribution of internal components of the sample, we study the confocal 3D imaging reconstruction algorithm based on the synchrotron radiation infrared source. A confocal 3D imaging model is built by the single point detector scanning imaging on the basis of the principle and no-linear characteristics of synchrotron radiation infrared confocal spectroscopy 3D imaging. Based on the characteristics of the forward model, the model of the test sample (an absorption shell) is established to simulate the infrared confocal spectroscopy 3D imaging measurement process, and the raw data of the infrared confocal spectroscopy 3D imaging is obtained. Levenberg-Marquardt algorithm and the modified Gauss-Newton algorithm are used to reconstruct the sample model data. The reconstruction results show that the Levenberg-Marquardt algorithm can reconstruct the 3D information of the sample when no random noise is added to the forward model. When 1% noise is in the forward model, the reconstruction result of Levenberg-Marquardt algorithm has a relatively large deviation with the actual result, but the reconstruction result of modified Gauss-Newton algorithm is accurate.

Key words spectroscopy; synchrotron radiation infrared source; confocal spectroscopy 3D imaging; 3D imaging reconstruction method

OCIS codes 300.6340; 170.1790; 110.3080; 100.3010

收稿日期: 2017-06-29; **收到修改稿日期:** 2017-07-23

基金项目: 国家自然科学基金(11475252, 31300480)、国家自然科学基金青年科学基金(11405258, 11605281, 11505267)、上海市自然科学基金(15ZR1448200, 15ZR1448900)

作者简介: 朱化春(1981—), 男, 博士, 助理研究员, 主要从事红外束线技术及红外谱学显微应用方面的研究。

E-mail: zhuhuachun@sinap.ac.cn

* **通信联系人.** E-mail: minchen@sinap.ac.cn

1 引 言

同步辐射红外光源(SRIR)具有宽波段、高亮度和高准直性等特点,比传统的热光源(如 Globar)的亮度高 2~3 个量级^[1-2]。同步辐射红外光源点的大小在微米量级,可以帮助显微谱学仪器在很宽的波长范围(1~1000 μm)内获得衍射极限的空间分辨率^[3-5]。同步辐射红外显微谱学技术以其高的空间分辨率和亮度优势,在生物医学、化学及考古等领域得到了广泛应用。Holman 等^[6]利用同步辐射红外显微谱学技术研究了活细胞,Benning 等^[7]利用该技术研究了蓝藻硅化后的分子特性,Cotte 等^[8]利用该技术进行了考古方面的研究。

理论上,可以利用同步辐射红外光源高空间分辨率和高亮度的特性,以及红外谱学显微镜共聚焦成像的特性测量物体的三维空间信息及一维光谱分布。Jamme 等^[9]使用同步辐射红外谱学显微镜尝试了水滴的共聚焦三维成像,初步实验表明可以利用现有的红外谱学显微镜使用同步辐射红外光源开展红外共聚焦谱学三维成像。但 Jamme 等认为由于 Schwarzschild 聚焦镜的特性,超出焦深范围的样品会进入 Schwarzschild 聚焦镜的阴影区域,不需要对测试数据进行重建处理。但是对于水平方向较大的样品,在共聚焦三维成像过程中,并不能保证非焦深范围内的所有样品点都能进入 Schwarzschild 聚焦镜的阴影区域,导致 Schwarzschild 聚焦镜的点扩展函数内覆盖的点会相互影响,使得实验结果与实际结果相差较大,因而需要对所测数据进行重建,以消除三维样品中各点的相互影响,提高红外共聚焦三维成像方法的空间分辨率。目前上海光源红外谱学显微线站所配置的探测器为点探测器,其每次测量的结果均为聚焦光束内覆盖的所有样品点信息的叠加。对于成分和空间分布较为复杂的物体,整个红外光束路径上的物质都会对光束产生影响(包括吸收、散射等),测量得到的光谱强度与物体成分的相互作用不再是线性关系,因此需要一套合适的算法来复原样品的原始信息。

本文根据红外共聚焦谱学三维测量原理构建了红外共聚焦谱学三维测量的前向模型,尝试利用 Levenberg-Marquardt 和改进型高斯-牛顿非线性拟合算法实现样品三维空间信息重建。相较于使用直接复原算法和去卷积算法,所用算法可以大幅提高重建信息的精度,而改进型高斯-牛顿算法提高了非线性拟合算法在共聚焦谱学三维重建时的容错能力。

2 共聚焦谱学三维成像重建算法原理

红外共聚焦谱学三维成像利用的是红外共聚焦显微镜较高的空间分辨率以及可以同时测量光谱的特性。红外共聚焦谱学三维成像的分辨率包括空间分辨率和光谱分辨率。其中:空间分辨率在水平方向上由物镜的数值孔径(NA)和红外显微镜的光阑决定,在垂直方向上则由显微镜的焦深决定;光谱分辨率由红外显微镜配备的红外光谱仪性能决定。

实验方法为逐点测量样品的每个微区,即可以分辨的最小的点,同步辐射红外谱学显微空间分辨率通常在数微米左右。每次测量时,所测得的光谱强度信息为共聚焦显微镜的光束经过样品内所有微区时吸收、散射后的光谱信息,其原理如图 1 所示。首先对样品在 XY 平面进行扫描,获得单层信息,然后在 Z 方向依次进行逐层扫描,如图 2 所示。考虑到同步辐射红外谱学显微空间分辨率为数微米,将扫描步长定为 5 μm 。

红外光束在样品中传输时通常会有瑞利散射和米氏散射等效应。为简化模型,只考虑样品吸收对测量结果的影响。光谱强度 $F(\alpha, \nu, x, y, z)$ 可表示为

$$F(\alpha, \nu, x, y, z) = I_0(\nu) \sum_{m=1}^M \sum_{n=1}^N \exp \left[- \sum_{l=1}^L \alpha(\nu, m, n, l) \delta L \right], \quad (1)$$

令:

$$f(\nu, m, n, l) = \exp \left[- \sum_{l=1}^L \alpha(\nu, m, n, l) \delta L \right], \quad (2)$$

式中 $f(\nu, m, n, l)$ 为每个微光锥透过样品后到达探测器的光强衰减系数; ν 为光谱频率; $\alpha(\nu, m, n, l)$ 为聚焦光锥内每个微区的吸收系数; M 和 N 分别为聚焦光锥覆盖的样品在 X 方向和 Y 方向上的最大微区数目;

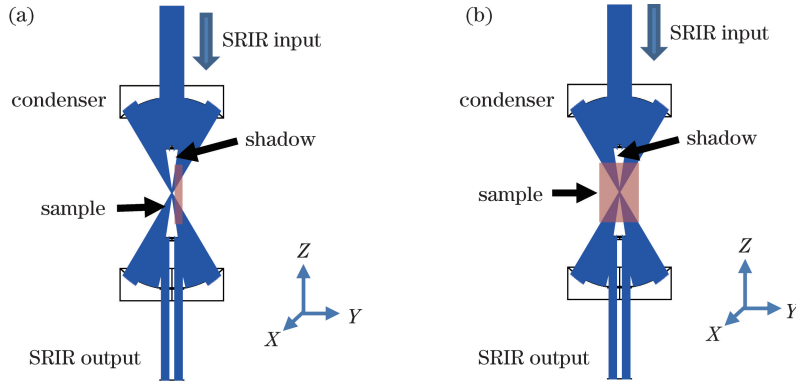


图 1 红外谱学显微镜用 Schwarzschild 镜头的聚焦光束与(a)小样品、(b)大样品的交汇情况
Fig. 1 Confluence of focused beam of Schwarzschild lens used in the infrared spectroscopy microscope and (a) small sample or (b) large sample

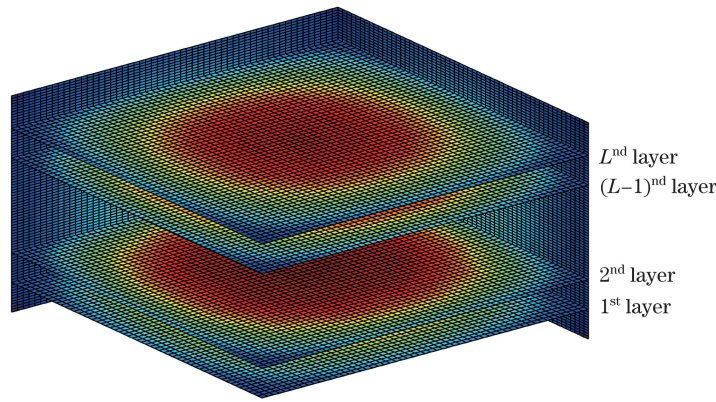


图 2 红外共聚焦谱学三维图像获取过程
Fig. 2 3D image acquisition process of infrared confocal spectroscopy

L 为 Z 方向的微区数目; δL 为红外光束在微区内的长度, $\delta L \approx h / \cos \theta$, h 为垂直方向每层之间的距离, θ 为光线的入射角; $I_0(\nu)$ 为入射光谱强度。

由(1)式可知, 每个微区的测量结果与聚焦光锥覆盖微区的吸收相关, 且与之不成线性关系, 也难以通过变换转化成线性方程, 无法采用求解线性方程的方法求解出每个微区的吸收系数。在实际测试时, 由于红外谱学显微镜使用的是点探测器, 无法大范围地扫描样品(否则实验时间会非常长), 采集的数据量不大(特殊要求除外), 所测样品的数据点约为 10000 个, 可使用普通计算机采用非线性拟合算法来重建样品在某个谱段的三维形貌信息。

将前向模型按照 $X \rightarrow Y \rightarrow Z$ 的顺序展开为一维向量 $\mathbf{F}(\boldsymbol{\alpha}, \nu)$, 其中向量 $\boldsymbol{\alpha}$ 是由样品中每个测量点的吸收系数组合而成的一维向量(特定波数下, 比如 2000 cm^{-1})。在不考虑测量误差的情况下, 使用 Levenberg-Marquardt 非线性拟合算法通过多次迭代计算样品在特定波数下的吸收信息^[10-11]:

$$\boldsymbol{\alpha}_{i+1} = \boldsymbol{\alpha}_i + (\mathbf{K}_i \mathbf{K}_i^T + \gamma_i \mathbf{I})^{-1} \mathbf{K}_i^T [\mathbf{I}_{\text{measure}} - \mathbf{F}(\boldsymbol{\alpha}_i, \nu)], \quad (3)$$

式中 $\boldsymbol{\alpha}_i$ 为样品测量结果的吸收信息的先验信息, 对于一个未知的样品, 在拟合计算开始时, 可以使用零向量代入计算; 矩阵 \mathbf{K}_i 为向量 $\mathbf{F}(\boldsymbol{\alpha}_i, \nu)$ 对向量 $\boldsymbol{\alpha}_i$ 的导数, 即 $\mathbf{K}_i = \partial \mathbf{F}(\boldsymbol{\alpha}_i, \nu) / \partial \boldsymbol{\alpha}_i$; 矩阵 \mathbf{K}_i^T 为矩阵 \mathbf{K}_i 的转置矩阵; \mathbf{I} 为单位矩阵; $\mathbf{I}_{\text{measure}}$ 为测量结果; γ 为阻尼因子, 当其值较小时, 算法退化为高斯-牛顿算法的最优步长算法, 当其值较大时, 算法退化为梯度下降算法的最优步长算法; i 表示第 i 次迭代。然后逐步代入每个光谱对应的吸收数据, 就可以计算出样品在整个测量光谱波段吸收的三维空间分布和一维光谱信息。在实际计算中, 为避免 Levenberg-Marquardt 拟合算法得到的结果为局部最优解而不是全局最优解, 需要合理设置样品吸收信息的先验信息, 或选择一个合理的全局的优化参数与之相结合。

在实际实验时,由于存在光源、机械、电子学等方面的噪声,最后获得的图像信息会存在噪声,而在做二维样品测试时,其噪声通常小于 0.1%。为了使算法具有一定的稳健性,在模拟计算中加入了 1% 的噪声。但 Levenberg-Marquardt 非线性拟合算法在用于红外共聚焦谱学三维成像前向模型的重建时,容纳误差的能力有限。为更真实地模拟实验,本课题组尝试加入误差模型,并采用结合了 Levenberg-Marquardt 算法原理的高斯-牛顿迭代算法^[12],即

$$\alpha_{i+1} = \alpha_i + [(1 + \gamma)S_a^{-1} + \mathbf{K}_i^T S_\varepsilon^{-1} \mathbf{K}_i]^{-1} \{ \mathbf{K}_i^T S_\varepsilon^{-1} [\mathbf{I}_{\text{measure}} - \mathbf{F}(\alpha_i, \nu)] + S_a^{-1}(\alpha_i - \alpha_a) \}, \quad (4)$$

式中 S_a 为先验信息的误差模型, S_ε 为仪器的误差模型。通过计算发现,使用该算法进行迭代复原可使模型容纳误差的能力达到 1% 左右。具体模型和模拟计算结果见第 3 节。

3 理论模拟

前向模型是根据样品信息、仪器参数、测量方法等信息建立的与实际情况相符的测量数据模型,理论上知道样品各点的吸收系数后,根据前向模型算出的结果应和样品的实际测试结果基本相同。

利用红外共聚焦谱学三维成像完成样品的测试后,根据已经确立的前向模型和 $\mathbf{F}(\alpha_i, \nu)$ 以及(3)式或(4)式所示的迭代算法,对测试结果进行三维重建,在理论上可以求解出样品各点的吸收信息。

为了验证该重建方法的正确性,建立了一个样品模型。该模型为一个小球,外层包覆一层与小球吸收系数不同的壳层。假设在波数为 2000 cm^{-1} 时,球壳的吸收系数为 $0.1 \mu\text{m}^{-1}$,球壳中心的吸收系数为 $0.075 \mu\text{m}^{-1}$,球壳外周包覆一层吸收系数为 $0.05 \mu\text{m}^{-1}$ 的介质(充当包埋基)。在计算模拟时,球壳以离散点表示,如图 3 所示。

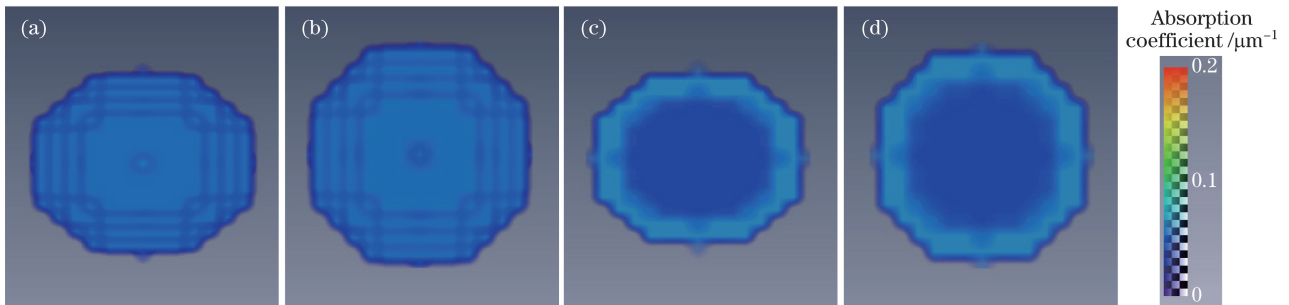


图 3 模型样品吸收系数分布的三维分布图。(a) YZ 视图;(b) XY 视图;(c) YZ 剖面图;(d) XY 剖面图

Fig. 3 3D distributions of absorption coefficient of model sample. (a) YZ view; (b) XY view; (c) YZ profile; (d) XY profile

加入实验用仪器的相关参数后模拟实验室的测量过程,可得最终的测量数据(2000 cm^{-1} 波数时吸收信息的空间分布),将该测试数据直接除以数据点之间的距离,便可得直接复原数据,如图 4 所示。比较图 3、图 4 和图 5 可知,利用直接复原法以及去卷积算法($NA=0.5$, 波长为 $5 \mu\text{m}$, 显微镜模式;共聚焦、标准方法)获得的重建数据与样品的实际信息相差较大。

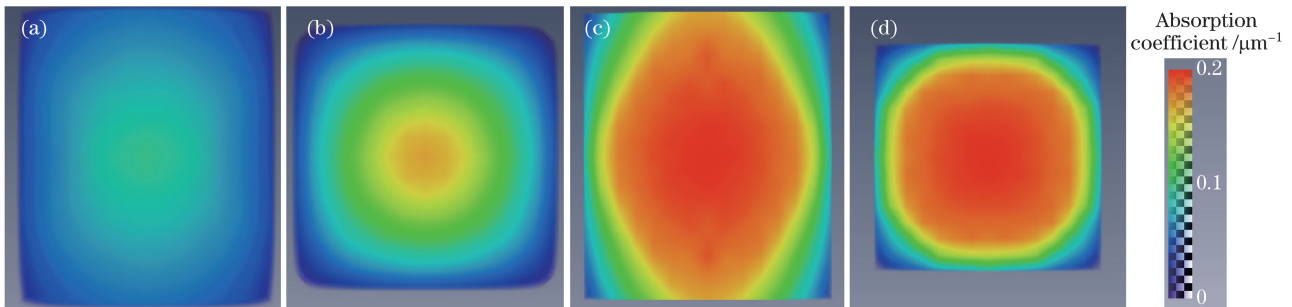


图 4 利用直接复原法重建样品吸收系数的三维分布图。(a) YZ 视图;(b) XY 视图;(c) YZ 剖面图;(d) XY 剖面图

Fig. 4 3D distributions of absorption coefficient of model sample reconstructed by the direction method.

(a) YZ view; (b) XY view; (c) YZ profile; (d) XY profile

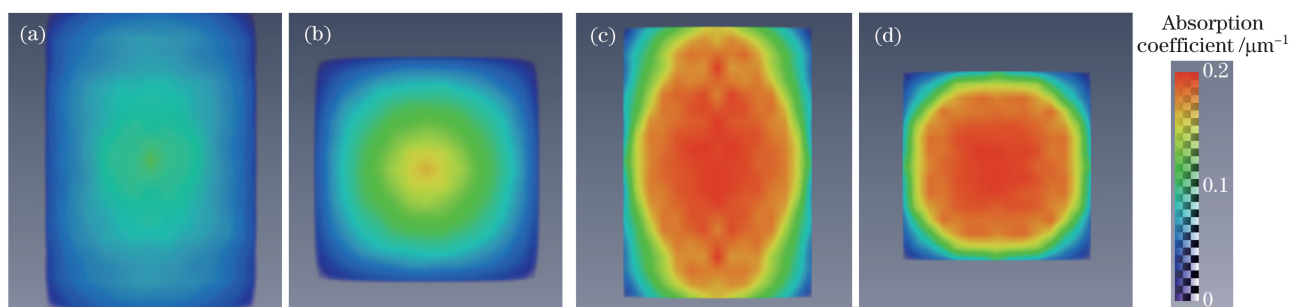


图 5 利用去卷积算法重建样品吸收系数的三维分布图。(a) YZ 视图;(b) XY 视图;(c) YZ 剖面图;(d) XY 剖面图

Fig. 5 3D distributions of absorption coefficient of model sample reconstructed by the deconvolution algorithm.

(a) YZ view; (b) XY view; (c) YZ profile; (d) XY profile

对所测数据使用 Levenberg-Marquardt 非线性拟合算法进行重建,得到的结果如图 6 所示,样品中心沿 Z 轴和 Y 轴方向的吸收系数分布如图 7 所示。对比可以发现,当样品中不包含误差时,使用 Levenberg-Marquardt 非线性拟合算法可以准确重建样品的原始吸收信息。

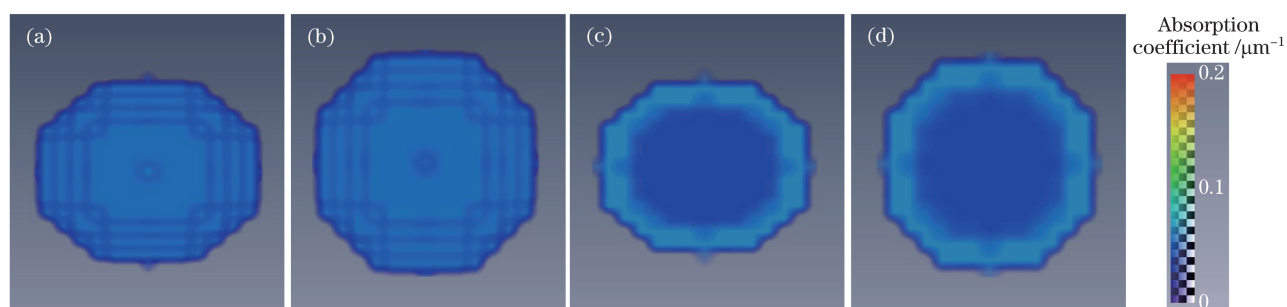


图 6 利用 Levenberg-Marquardt 非线性拟合算法重建样品吸收系数的三维分布图。(a) YZ 视图;(b) XY 视图;

(c) YZ 剖面图;(d) XY 剖面图

Fig. 6 3D distributions of absorption coefficient of model sample reconstructed by Levenberg-Marquardt non-linear fitting algorithm. (a) YZ view; (b) XY view; (c) YZ profile; (d) XY profile

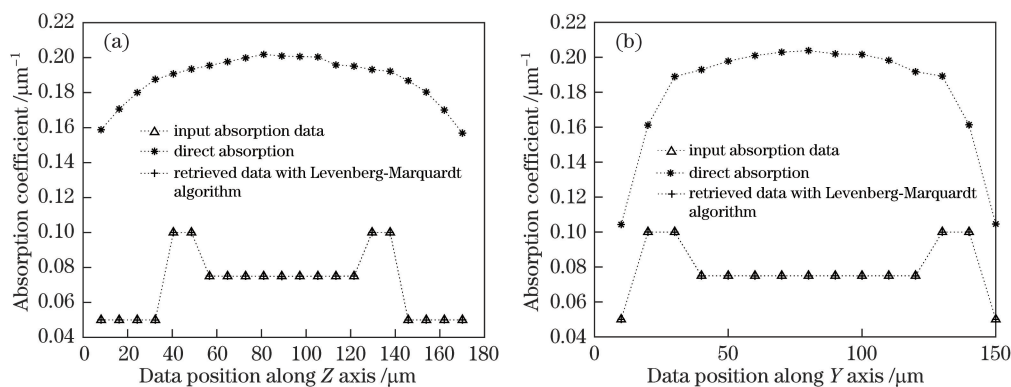


图 7 无误差时样品模型与重构结果中心的吸收系数分布。(a)沿 Z 轴;(b)沿 Y 轴

Fig. 7 Distributions of absorption coefficient of model sample and reconstruction result center with no random noise.

(a) Along Z axis; (b) along Y axis

但是 Levenberg-Marquardt 非线性拟合算法应用于该模型时,对误差的容纳有限,考虑到实验中存在一定的噪声而在前向模型结果中加入 1% 的随机噪声后,反演的结果与实际的输入结果相差较大,如图 8 所示。

当模型中加入 1% 的误差时,使用改进型高斯-牛顿非线性拟合算法。因该算法模型中已经加入了误差参数,因而迭代得到的结果要优于使用 Levenberg-Marquardt 算法得到的结果,如图 9 所示,其中心沿 Z 轴和 Y 轴方向的吸收数据分布如图 10 所示。由图 10 可见,利用改进型高斯-牛顿算法,在模型中含有 1% 的

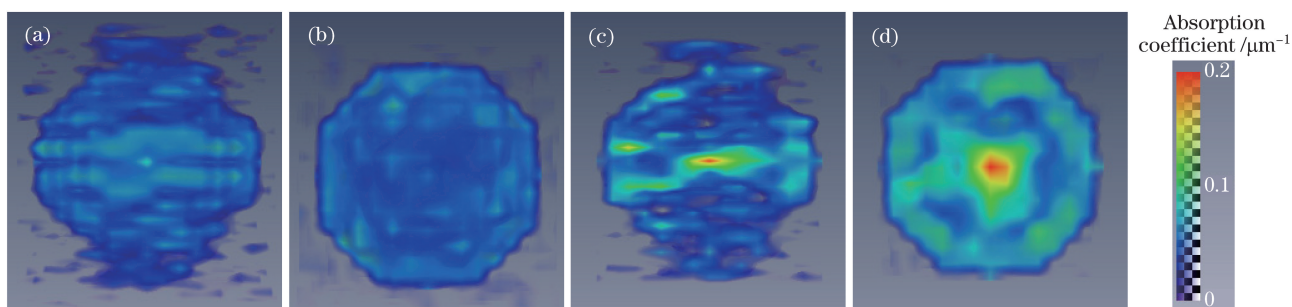


图 8 模型中含有 1% 误差时, Levenberg-Marquardt 算法重建的样品吸收系数三维分布图。(a) YZ 视图; (b) XY 视图; (c) YZ 剖面图; (d) XY 剖面图

Fig. 8 3D distributions of absorption coefficient of model sample reconstructed by Levenberg-Marquardt algorithm with 1% random error. (a) YZ view; (b) XY view; (c) YZ profile; (d) XY profile

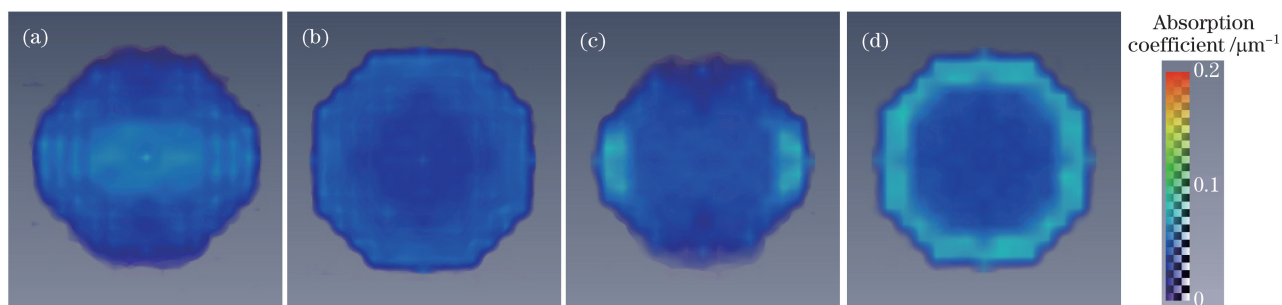


图 9 模型中含有 1% 误差时, 使用改进型高斯-牛顿算法重建的样品吸收系数三维分布图。(a) YZ 视图; (b) XY 视图; (c) YZ 剖面图; (d) XY 剖面图

Fig. 9 3D distributions of absorption coefficient of model sample reconstructed by modified Gauss-Newton algorithm with 1% random noise. (a) YZ view; (b) XY view; (c) YZ profile; (d) XY profile

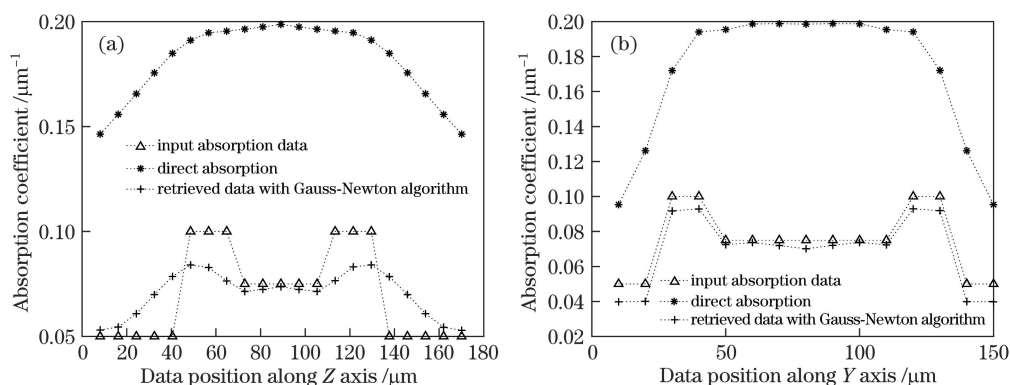


图 10 模型中含有 1% 误差时, 样品模型与重建结果中心的吸收系数分布。(a) 沿 Z 轴; (b) 沿 Y 轴

Fig. 10 Distributions of absorption coefficient of model sample and reconstruction result center with 1% random noise.

(a) Along Z axis; (b) along Y axis

误差时, 水平方向(Y 轴方向)上的重建结果与实际的输入结果相差不大, 但是垂直方向(Z 轴方向)上的重建结果与实际结果有差异, 但仍优于使用 Levenberg-Marquardt 算法得到的结果。

4 结 论

根据同步辐射红外共聚焦谱学三维成像的原理及非线性特性, 构建了红外共聚焦谱学三维成像用前向模型, 使用该模型模拟红外共聚焦谱学三维成像的测试过程, 得到了共聚焦三维测试数据。鉴于红外共聚焦谱学三维成像的非线性特性以及直接光谱复原重建算法、去卷积算法处理这类问题的局限性, 提出可使用 Levenberg-Marquardt 算法和高斯-牛顿算法等非线性算法对测试结果进行三维信息重建。模拟计算结果表

明:可以利用非线性拟合算法,根据共聚焦谱学三维成像前向模型建立的测试数据重建样品的三维信息;Levenberg-Marquardt 算法可用于不包含误差的红外共聚焦谱学三维成像数据的重建,但对包含误差的前向模型的数据重建结果不理想;对于包含误差的红外共聚焦谱学三维成像前向模型的测试结果,可用含有阻尼因子的改进型高斯-牛顿算法进行三维数据重建,水平方向的重建结果与原始数据基本吻合,垂直方向的重建结果与实际结果有一定偏差,但优于直接重建结果和使用 Levenberg-Marquardt 算法得到的结果。

参 考 文 献

- [1] Ji T, Tong Y, Zhu H, *et al.* The status of the first infrared beamline at Shanghai Synchrotron Radiation Facility[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 2015, 788: 116-121.
- [2] Zhang Z, Chen M, Tong Y, *et al.* Performance of the infrared microspectroscopy station at SSRF[J]. Infrared Physics & Technology, 2014, 67: 521-525.
- [3] Levenson E, Lerch P, Martin M C. Infrared imaging: synchrotrons vs. arrays, resolution vs. speed[J]. Infrared Physics & Technology, 2006, 49(1/2): 45-52.
- [4] Levenson E, Lerch P, Martin M C. Spatial resolution limits for synchrotron-based spectromicroscopy in the mid- and near-infrared[J]. Journal of Synchrotron Radiation, 2008, 15(4): 323-328.
- [5] Zhu Huachun, Tong Yajun, Ji Te, *et al.* Spatial resolution measurement of synchrotron radiation infrared microspectroscopy beamline[J]. Acta Optica Sinica, 2015, 35(4): 0430002.
朱化春, 佟亚军, 吉特, 等. 同步辐射红外谱学显微光束线站的空间分辨率测试[J]. 光学学报, 2015, 35(4): 0430002.
- [6] Holman H Y N, Martin M C, Mckinney W R. Tracking chemical changes in a live cell: Biomedical applications of SR-FTIR spectromicroscopy[J]. Spectroscopy, 2003, 17(2/3): 139-159.
- [7] Benning L G, Phoenix V, Yee N, *et al.* Molecular characterization of cyanobacterial silicification using synchrotron infrared micro-spectroscopy[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2004, 68(4): 729-741.
- [8] Cotte M, Dumas P, Taniguchi Y, *et al.* Recent applications and current trends in Cultural Heritage Science using synchrotron-based Fourier transform infrared micro-spectroscopy[J]. Comptes Rendus Physique, 2009, 10(7): 590-600.
- [9] Jamme F, Lagarde B, Giuliani A, *et al.* Synchrotron infrared confocal microscope: application to infrared 3D spectral imaging[J]. Journal of Physics: Conference Series, 2013, 425(14): 142002.
- [10] Levenberg K Q. A method for the solution of certain non-linear problem in least squares[J]. Quarterly of Applied Mathematics, 1944, 2(3): 164-168.
- [11] Marquardt D W. An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters[J]. Journal of the Society for Industrial and Applied Mathematics, 1963, 11(2): 431-441.
- [12] Rodgers C D. Inverse methods for atmospheric sounding: theory and practice[M]. Singapore: World Scientific Publishing Co Pte Ltd, 2000.