基于 Kirkpatrick-Baez 镜聚焦的 X 射线小角散射 显微层析成像

胡涛^{1,2},滑文强¹,王玉丹¹,王玉柱¹,周平¹,洪春霞¹,边风刚^{1,2},肖体乔^{1,2}

1中国科学院上海应用物理研究所,上海 201204;

²中国科学院大学,北京 100049

摘要 X射线小角散射显微层析成像(SAXS-CT)是一种无损的结构表征技术,用于研究非均匀物质纳米结构信息 及其空间分布;在上海同步辐射光源(SSRF)设计并搭建了基于 Kirkpatrick-Baez(KB)镜聚焦的 SAXS-CT 成像系统,并选取毛竹和注塑聚乳酸样品进行实验验证。结果表明:该 SAXS-CT 成像系统的聚焦光斑尺寸可以达到 20 μm以下;对于毛竹样品,得到了其内部维管束和薄壁细胞的位置分布及散射差异,同时获取了内部纳米纤维的 取向特点;对于注塑聚乳酸样品,发现其内部片晶结构具有分层分布特征,获取了片晶结构的分布图像以及长周期 分布图像;实验结果验证了该 SAXS-CT 成像系统的可靠性及实用性。

关键词 X射线光学; X射线小角散射显微层析成像; Kirkpatrick-Baez 镜; 同步辐射; 旋转不变性
 中图分类号 O434.19 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS201838.0134001

Small-Angle X-Ray Scattering Tomography Based on Micro-Focusing Kirkpatrick-Baez Mirrors

Hu Tao^{1,2}, Hua Wenqiang¹, Wang Yudan¹, Wang Yuzhu¹, Zhou Ping¹, Hong Chunxia¹, Bian Fenggang^{1,2}, Xiao Tiqiao^{1,2}

¹ Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201204, China; ² University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Abstract Small-angle X-ray scattering tomography (SAXS-CT) is a non-destructive structural characterization method for nanostructure analysis of heterogeneous materials and its space distribution. The SAXS-CT system based on micro-focusing Kirkpatrick-Baez (KB) mirrors is developed at Shanghai Synchrotron Radiation Facility (SSRF). Samples of *Phyllostachys edulis* and injection-molded polylactic acid are chosen for experimental verification. The results show that the spot size of the SAXS-CT system can be focused below 20 μ m. For the *Phyllostachys edulis* sample, the position distribution and scattering difference of vascular bundle and parenchyma cell, and the orientation characteristic of nano-fibers are obtained. For the injection-molded polylactic acid sample, the lamella structure inside the sample exhibits the layered distribution characteristic, and the distribution and long spacing of lamella is acquired. The experimental results confirm the reliability and practicality of the SAXS-CT system.

Key words X-ray optics; small-angle X-ray scattering tomography; Kirkpatrick-Baez mirror; synchrotron radiation; rotational invariance

OCIS codes 110.6955; 340.7470; 340.6720

收稿日期: 2017-07-17; 收到修改稿日期: 2017-09-07

基金项目:国家重点研发计划(2017YFA0403801,2017YFA0206004)、国家自然科学基金(U1732123,U1232205,11275257, 11405260,11405261)

作者简介:胡涛(1990-),男,博士研究生,主要从事 X 射线成像光学方面的研究。E-mail: hutao@sinap.ac.cn

导师简介:肖体乔(1966—),男,研究员,博士生导师,主要从事成像光学和X射线光学方面的研究。

E-mail: tqxiao@sinap.ac.cn(通信联系人)

1 引 言

X射线小角散射(SAXS)作为一种研究物质内 部纳米尺度结构信息的重要手段[1],已被广泛应用 于生物大分子^[2]、高分子材料^[3]、合金^[4]等领域。常 规的 SAXS 手段通常采用几百微米的大尺寸光斑, 这对于非均匀样品来说得到的二维散射图是样品内 部不同组分散射信息的叠加,会产生混淆,从而导致 样品的纳米结构分析异常困难。微聚焦 X 射线小 角散射(µSAXS)则可以将光斑尺寸聚焦到几十微 米以下,可通过二维扫描来研究和分析非均匀体系 的纳米结构信息及分布[5-8]。但由于采集到的二维 散射图是 X 射线路径上所有散射信息的叠加,为了 避免信息发生混淆,往往需要在实验前对样品进行 切片处理,切片处理的难度较高,且对样品具有破坏 性,易造成样品原有结构信息的改变。因此,需要一 种无损的方法来获取样品内部完整的纳米结构信 息,以满足对非均匀不可切片材料的研究需求。

X射线小角散射显微层析成像(SAXS-CT)^[9] 可以很好地解决这一问题。SAXS-CT 是一种将微 聚焦扫描 X射线小角散射与显微 CT 成像技术^[10-12] 相结合的技术,充分利用了显微 CT 成像技术的特 点,可以在不破坏样品的情况下,通过重建获得样品 内部的结构信息。SAXS-CT 同时具备显微成像和 SAXS 这 2项技术的特性,既可以在不同散射方向 对样品内部进行成像,以有效区分样品内部的结构 差异,又能够获得样品内部任意位置在倒易空间的 散射分布,无损地保留样品深度方向上的纳米结构 信息。SAXS-CT既能在实空间成像,又能在倒易空 间成像,是一种多维度、多空间的成像方法,已被应用 到软组织^[13-14]、骨骼^[15]、聚合物^[16]等的研究中。

本课题组在上海同步辐射光源(SSRF)的 SAXS线站(BL16B1)和Bio-SAXS线站(BL19U2) 上搭建了基于 Kirkpatrick-Baez(KB)镜聚焦的 SAXS-CT成像系统,并进行了一系列实验研究,采 用毛竹和注塑聚乳酸样品对该 SAXS-CT 成像系统 的可靠性及实用性进行实验验证。

2 实验原理和方法

2.1 实验原理

微聚焦 SAXS-CT 实验原理示意图如图 1 所 示,其中 *xOy* 为样品坐标系,*sOu* 为实验室坐标系, X 射线方向与 *s* 方向相同,*z* 为竖直方向,*φ* 为旋转角 度,Δ*d* 为 X 射线与像素的交线长度。将 KB 镜聚焦 得到的微束 X 射线打到样品上,产生的小角散射信息 被二维探测器记录下来。为了重建得到样品深度方 向的散射信息,需要对样品沿 *u* 方向(垂直于 *z* 轴和 入射方向)进行光栅式扫描,并绕 *z* 轴旋转 180°,以获 取样品在不同角度、不同位置时的散射信息。为了 获得均匀的采样,固定旋转角度间隔和平移步长。



图 1 微聚焦 SAXS-CT 原理示意图。(a)实验装置;(b)数据采集流程

Fig. 1 Schematic of micro-focusing SAXS-CT system. (a) Experimental setup; (b) data acquisition flow

由于所有的散射都产生在小角度范围内,因此 探测器上记录的二维散射图可近似为一个线积分过 程^[14],即

$$\exp\left[-\int_{s}^{+\infty}\mu(\tilde{s})\mathrm{d}\tilde{s}\right]\right]\mathrm{d}s=I_{1}\int\left[f(s,u,q)\Omega(s,u,q)\right]\mathrm{d}s,$$

(1)

$$I(u,\varphi,\boldsymbol{q}) = I_0 \int \left\{ \exp\left[-\int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s}\right] f(s,u,\boldsymbol{q}) \Omega(s,u,\boldsymbol{q}) \cdot \int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \right] f(s,u,\boldsymbol{q}) \Omega(s,u,\boldsymbol{q}) \cdot \int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \left[\int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \right] f(s,u,\boldsymbol{q}) \Omega(s,u,\boldsymbol{q}) \cdot \int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \left[\int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \right] f(s,u,\boldsymbol{q}) \Omega(s,u,\boldsymbol{q}) \cdot \int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \left[\int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \right] f(s,u,\boldsymbol{q}) \Omega(s,u,\boldsymbol{q}) \cdot \int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \left[\int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \right] f(s,u,\boldsymbol{q}) \Omega(s,u,\boldsymbol{q}) \cdot \int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \left[\int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \right] f(s,u,\boldsymbol{q}) \Omega(s,u,\boldsymbol{q}) \cdot \int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \left[\int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \right] f(s,u,\boldsymbol{q}) \Omega(s,u,\boldsymbol{q}) \cdot \int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \left[\int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \right] f(s,u,\boldsymbol{q}) \Omega(s,u,\boldsymbol{q}) \cdot \int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \left[\int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \right] f(s,u,\boldsymbol{q}) \Omega(s,u,\boldsymbol{q}) \cdot \int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \left[\int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \right] f(s,u,\boldsymbol{q}) \Omega(s,u,\boldsymbol{q}) \cdot \int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \left[\int_{-\infty}^{s} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s} \right] d\tilde{s}$$

式中 $I(u, \varphi, q)$ 为探测器上记录的散射强度分布, $q = 4\pi \sin \theta / \lambda$ 为散射矢量(θ 为散射角, λ 为X射线波 长),f(s, u, q)为样品局部散射分布, $\exp\left[-s \int_{-\infty} \mu(\tilde{s}) d\tilde{s}\right]$

和 exp $\left[-\int_{s} \mu(s) ds\right]$ 为样品内部散射前后的吸收 (μ 为吸收系数, \bar{s} 为 X 射线在样品内部散射前后的 路径), I_0 为入射光强, I_1 为透射光强(其强度由附在 Beamstop上的电离室记录), $\Omega(s,u,q)$ 为固体角。 要重建得到样品不同位置上的二维散射分布,需要 满足以下条件:1)忽略多重散射的影响;2)散射满足 旋转不变性,即样品局部散射分布 f(s,u,q)不会 因为旋转而发生变化。对于不满足旋转不变性的散 射分布,只有沿 $q(0,q_z)$ 方向的散射能够完美重 $建^{[17]}$ 。在重建之前,需要对采集到的所有二维散射 图 $S(u,\varphi,q)$ 进行归一化处理,以消除样品吸收产生 的影响。归一化处理表达式为

$$S(u,\varphi,\boldsymbol{q}) = \frac{I(u,\varphi,\boldsymbol{q})}{I_1\Omega(s,u,\boldsymbol{q})} = \int f(s,u,\boldsymbol{q}) \mathrm{d}s_\circ \quad (2)$$

归一化处理后的二维散射图 $S(u, \varphi, q)$ 就演化 成了 f(s, u, q)的 Radon 变换过程。这样,对于任 意 $q(q_u, q_z)$ 方向,都能够利用 CT 重建算法重建得 到对应的样品切片图像,最终就能获得关于 $f(s, u, q_u, q_z)$ 的完整的四维信息,即样品内部任意 位置的二维散射分布。

2.2 旋转不变性分析

由于只有具有旋转不变性的散射分布才能够完 美重建,因此对散射分布旋转不变性的分析尤为重 要。累加样品在投影角度 φ 下所有平移位置 u 处 的二维散射分布 $S_{\varphi}(q_u, q_z, u)$,即在投影角度 φ 下 样品整体的二维散射分布 $S_{\varphi}(q_u, q_z)$ 为

$$S_{\varphi}(q_{u},q_{z}) = \sum_{u=0}^{L_{u}} S_{\varphi}(q_{u},q_{z},u), \qquad (3)$$

式中L_u为平移总步长。

如果样品内部各处在 $q(q_u,q_z)$ 方向的散射具 有旋转不变性,那么 $S_{\varphi}(q_u,q_z)$ 的值不会因为旋转 角度 φ 而发生改变^[18]。为了检验样品二维散射分 布的旋转不变性,对所有的 $q(q_u,q_z)$ 方向,计算不同 投影角度下 $S_{\varphi}(q_u,q_z)$ 的相对标准偏差(RSD) x_{RSD} , 并将其作为衡量标准。相对标准偏差的表达式为

$$x_{\rm RSD} = \frac{\sigma \left[S_{\varphi}(q_u, q_z) \right]}{S_{\varphi}(q_u, q_z)}, \qquad (4)$$

式中 $\sigma[S_{\varphi}(q_u,q_z)]$ 为不同投影角度下 $S_{\varphi}(q_u,q_z)$ 的 标准偏差, $\overline{S_{\varphi}(q_u,q_z)}$ 为不同投影角度下 $S_{\varphi}(q_u,q_z)$ 的均值。

2.3 重建算法

在 SAXS-CT 成像系统中,往往需要采集上万 张 SAXS 图,数据量庞大,并且需要对每一个 q(q_u,q_z)方向进行重建,计算量同样很庞大。为了 获得更精准、更快速的重建结果,采用有序子集最大 期望值(OSEM)算法^[19],该算法在最大似然期望值 最大算法(MLEM)的基础上加入了有序子集,使重 建效率大幅提高。该算法相比于传统的滤波反投影 算法(FBP),能够在有限投影角度下获得高质量的 重建结果,从而大幅提高了实验效率^[20]。OSEM 算 法作为一种迭代算法,其迭代流程如下^[19]:

1) 初始化。选择 $q(q_u,q_z)$ 方向,迭代次数 k =0,样品切片图像初始值 $\hat{S}^k(i,j,q) = 1$,其中(i,j)为像素。

2) 重复下述过程,直到 k=T,T 为总迭代次数。

①对于所有像素(i, j),有序子集修正前样品切片 图像 $S^{1}(i, j, q) = \hat{S}^{k}(i, j, q), k = k + 1$;

②对于子集, $l = 1, 2, \dots, L(L)$ 为子集数量), 投 影 $p^{l}(m, n, q) = \sum_{i,j} A(i, j, m, n) S^{l}(i, j, q)$, 反投影 $S^{l+1}(i, j, q) = \frac{S^{l}(i, j, q)}{\sum_{(m,n) \in C_{l}} A(i, j, m, n)} \sum_{(m,n) \in C_{l}} \frac{A(i, j, m, n)I(m, n, q)}{p^{l}(m, n, q)}$.

其中,*m* 为投影角度数,*n* 为投影数,*C_l* 为有序子 集,*A*(*i*,*j*,*m*,*n*)为像素(*i*,*j*)对*I*(*m*,*n*,*q*)的贡献 因子,*S^l*(*i*,*j*,*q*)为经过第*l*个有序子集修正后的样 品切片图像,*I*(*m*,*n*,*q*)为第*m* 个投影角下第*n* 条 投影在 *q* 方向的散射强度。*A*(*i*,*j*,*m*,*n*)的计算 基于 Siddon 算法^[21],其基本思想是计算射线与每 个像素的交线长度。有序子集 *C_l* 的划分由投影 角度总数 *M* 和子集数量 *L* 决定,第*l* 个子集 *C_l*包 含 {*l*,*l*+*L*,*l*+2*L*,...,*l*+(*M*/*L*-1)*L*}角度下的 所有投影。

③ $\hat{S}^{k}(i,j,q) = S^{L+1}(i,j,q), S(i,j,q)$ 为第 k 次迭代后 q 方向下的样品切片图像。

3 实验装置

在上海同步辐射光源 Bio-SAXS 线站(BL19U2) 搭建的基于 KB 镜聚焦的 SAXS-CT 成像系统如 图 2(a)所示,该光束线站能提供的光子能量范围是 7~15 keV,其能量分辨率为 $\Delta E/E = 5 \times 10^{-4}$ @ 12 keV。聚焦光斑图像如图 2(b)所示。由图 2(b) 可知,在 12 keV 能量下,聚焦光斑尺寸可以达到 15.8 μ m(水平)×15.3 μ m(垂直),聚焦光斑处的光 通量达到 9×10¹⁰ s⁻¹。探测器选用的是高效率的

(a)

单光子探测器 PILATUS 1M,其单个像素尺寸为 172 μ m×172 μ m。KB镜的设计参数如表 1 所示。





图 2 (a)上海同步辐射光源微聚焦 SAXS-CT 实验装置图;(b)聚焦光斑图像

Fig. 2 (a) Experimental photoes of micro-focusing SAXS-CT at Shanghai Synchrotron Radiation Facility;

(b) focusing spot photograph

表1 KB镜的设计参数

Table 1 Design parameters of KB n	nirrors
-----------------------------------	---------

Mirror	Mirror surface dimension	Range of grazing incidence angle /mrad	Shape	Tangential slop error (root-mean- square) /µrad	Sagittal slop error (root-mean- square) /µrad	Roughness (root-mean- square) /nm
Vertically deflecting mirror	102 mm×12.5 mm	$2\sim 6$ (optimization for 3.5 mrad)	Ellipse	<2 (1 μ rad typical value)	<20	<0.3
Horizontally deflecting mirror	102 mm×12.5 mm	2~6 (optimization for 3.5 mrad)	Ellipse	<2 (1 µrad typical value)	<20	<0.3

3.1 生物样品

为了验证微聚焦 SAXS-CT 成像方法的可靠 性,选用毛竹(直径约为3 mm,高度约为12 mm 的 圆柱体)作为测试样品。毛竹可以看成是由维管束 和薄壁细胞构成的天然复合材料^[22]。实验中选取 的入射光能量为12 keV,聚焦光斑尺寸为15.8 μm (水平)×15.3 μm(垂直),样品到探测器的距离为 2503 mm。如图1所示,在数据采集过程中,样品每 次转动的角度为3°,在180°范围内完成60次旋转。 在每个旋转角度下,样品平动231次,平动步长为 15 μm,以确保整个样品都能被X射线照射到,单张 二维散射图曝光时间为2 s,最终采集到了13860 张 二维散射图。

图 3 所示为毛竹样品旋转不变性分析计算结 果,即所有 $q(q_u,q_z)$ 方向下 $S_{\varphi}(q_u,q_z)$ 的相对标准 偏差分布。由图 3 可知,除去 Beamstop 和探测器 模块间隙的影响,样品在赤道方向上下区域(如红色 箭头所示)的 RSD 略增大,其主要原因是内部存在 少量的非完全垂直取向的纤维,但由于该区域的散 射较弱,因此并不影响整体二维散射分布的重建。 除此以外,其他散射区域均表现出了良好的旋转 不变性,最终样品的局部二维散射分布能很好地 得以重建。





毛竹样品微聚焦 SAXS-CT 实验结果如图 4 所 示。图 4(a)所示为常规显微 CT 重构切片图,其中 灰度较高的区域为维管束区域,灰度较低的区域为 薄壁细胞区域,分别编号为 1 和 2。图 4(b)所示为 实验采集到的一张二维散射图,为了提高散射切片 图的衬度以及研究样品不同散射特性的位置分布, 对所有的二维散射图进行积分,积分表达式为

$$\widetilde{I} = \int_{q_{\min}}^{q_{\max}} \int_{\eta_{\min}}^{\eta_{\max}} I(q,\eta) d\eta dq, \qquad (5)$$

式中 \hat{I} 为积分散射强度值,q为所选积分区域的半径, q_{\min} 和 q_{\max} 为所选积分区域(ROI)的最小半径和最大半径, η 为散射平面方位角, η_{\min} 和 η_{\max} 为所选积分区域最小方位角和最大方位角。如图4(b)所



- 图 4 毛竹样品微聚焦 SAXS-CT 实验结果。(a)显微 CT 重构切片图;(b)二维散射图;(c)使用积分区域 I 重建 得到的散射分布切片;(d)使用积分区域 II 重建得到的 散射分布切片;(e)维管束处重建得到的二维散射图; (f)薄壁细胞处重建得到的二维散射图
- Fig. 4 Micro-focusing SAXS-CT results for *Phyllostachys* edulis. (a) Micro-CT slice; (b) 2D SAXS pattern;
- (c) reconstructed integral scattering slice using region of integration I;
- (d) reconstructed integral scattering slice using region of integration [];
 - (e) reconstructed 2D SAXS pattern at vascular bundle;(f) reconstructed 2D SAXS pattern at parenchyma cell

示,分别在水平和垂直方向选取积分区域 $I(-10^{\circ} < \eta < 10^{\circ}, 0.37 \text{ nm}^{-1} \leq q \leq 0.85 \text{ nm}^{-1})$ 和积分区域 II($-100^{\circ} < \eta < -80^{\circ}, 0.17 \text{ nm}^{-1} \leq q \leq 0.26 \text{ nm}^{-1}$), 对应重建得到的切片图像如图 4(c)和图 4(d)所示。 由图 4(c)可知,区域 I 的散射主要集中在维管束区 域,而由图 4(d)可知, II 区域的散射主要集中在薄 壁细胞区域。利用 SAXS-CT 重建得到的维管束和 薄壁细胞区域位置与显微 CT 重建切片结果十分吻 合,验证了重建结果的可靠性。选取维管束处和薄 壁细胞处任意 2 个点,其重建得到的二维散射图如 图 4(e)和 4(f)所示。由图 4(e)可知,维管束处沿赤 道方向具有明显的散射条纹,说明内部纳米纤维具 有很好的垂直方向取向;而由图 4(f)可知,薄壁细 胞处的散射趋于各向同性,表明细胞壁内部的纳米 纤维取向无规。

3.2 高分子材料样品

高分子材料在注塑过程中,由于模腔内部的剪 切场以及温度场分布不均,注塑样品内部晶体结构 及其空间分布存在明显差异^[23],利用 SAXS-CT 成 像技术能够无损地将样品内部的晶体结构及分布呈 现出来。实验采用的注塑高分子材料为聚乳酸薄 片,样品尺寸为1 mm×4 mm×10 mm。实验选用 的入射光能量为 12 keV,聚焦光斑尺寸为20 μ m (水平)×15 μ m(垂直),样品到探测器的距离为 2560 mm。在数据采集过程中,样品每次转动的角度 为6°,在180°范围内完成 30 次旋转。在每个旋转角 度下,样品平动 220 次,平动步长为 20 μ m,最终采 集到 6600 张二维散射图。

图 5 所示为聚乳酸样品旋转不变性的分析计算 结果,即所有 $q(q_u,q_z)$ 方向下 $S_{\varphi}(q_u,q_z)$ 的相对标 准偏差分布。由图 5 可知,在主要散射区域,聚乳酸 样品同样表现出了良好的旋转不变性。

聚乳酸样品微聚焦 SAXS-CT 实验结果如图 6 所示。图 6(a)所示为显微 CT 重建切片图,由图 6(a) 可知,样品内部均匀,不存在结构差异。图 6(b)所 示为通过选取散射区域($-100^{\circ} < \eta < -80^{\circ}$, 0.29 nm⁻¹ $\leq q \leq 0.42$ nm⁻¹)对所有的二维散射图进 行积分重建得到的切片图像。由图 6(b)可知,样品 内部存在明显的分层结构,散射主要集中在距离聚 乳酸边缘 300 μ m 的皮层处以及距离样品边缘 1000 μ m的中间层处。图 6(c)~(f)为皮层和中间 层处重建得到的二维散射图。由图 6(c)~(f)可知, 在子午线方向都出现了类似于水滴状的散射条纹, 表明内部存在垂直于子午线方向取向的片晶结构,



图 5 聚乳酸样品旋转不变性计算结果 Fig. 5 Calculated results of rotational invariance for polylactic acid



图 6 聚乳酸样品微聚焦 SAXS-CT 实验结果。 (a)显微 CT 重建切片图;(b)积分散射重建切片图; (c)~(f)不同位置重建得到的 SAXS 图

Fig. 6 Micro-focusing SAXS-CT results of polylactic acid. (a) Micro-CT slice; (b) reconstructed integral scattering slice; (c)-(f) reconstructed 2D SAXS patterns at different locations 这是由 Shish-kebab 结构产生的^[24]。在样品芯层位 置并没有产生 Shish-kebab 结构,其主要原因是该 处较小的剪切速率导致聚乳酸分子链容易松弛^[23]。 实验结果表明,SAXS-CT 在获取样品内部晶体结 构及分布位置的同时,能展现出通过显微 CT 无法 看到的结构变化。

对重建得到的二维散射图作一维散射曲线,找 到曲线峰的位置,然后根据 Bragg 公式就能计算得 到片晶结构的长周期,图 7 所示为长周期在样品内 部的分布。由图 7 可知,皮层处的长周期约为 20~ 21 nm,中间层处的长周期约为 19~20 nm,相比皮



图 7 聚乳酸样品内部片晶结构的长周期分布

Fig. 7 Long spacing distribution of lamella in polylactic acid 层处的长周期有所减小。

4 结 论

在上海同步辐射光源设计并搭建了基于 KB 镜 聚焦的 SAXS-CT 成像系统,聚焦光斑尺寸可以达 到 15.8 μm(水平)×15.3 μm(垂直),聚焦光斑处的 光通量可以达到 9×10¹⁰ s⁻¹,并选取毛竹和注塑聚 乳酸样品进行了实验验证。对于毛竹样品,得到了 内部维管束和薄壁细胞的位置分布及散射差异,同 时获取了内部纳米纤维的取向特点。对于注塑聚乳 酸样品,发现其内部片晶结构具有分层分布的特征, 片晶结构主要集中在皮层和中间层处;同时获取了 片晶结构分布图像以及长周期分布图像。实验结果 验证了该 SAXS-CT 成像系统的可靠性及实用性, SAXS-CT 作为一种无损的、研究非均匀物质纳米 结构信息及空间分布的表征手段,有望能应用到材 料科学、生物医学等众多研究领域。

参考文献

- [1] Stribeck N, Schneider K, Zeinolebadi A, et al. Studying nanostructure gradients in injection-molded polypropylene/montmorillonite composites by microbeam small-angle X-ray scattering[J]. Science and Technology of Advanced Materials, 2014, 15(1): 015004.
- [2] Wang W H, Li L, Henzler K, et al. Protein immobilization onto cationic spherical polyelectrolyte brushes studied by small angle X-ray scattering [J]. Biomacromolecules, 2017, 18(5): 1574-1581.
- [3] Shinohara Y, Yamazoe K, Sakurai T, et al. Effect of structural inhomogeneity on mechanical behavior of injection molded polypropylene investigated with microbeam X-ray scattering[J]. Macromolecules, 2012, 45(3): 1398-1407.
- [4] Sun G A, Chen B, Wu E D, et al. Small angle X-ray

scattering study of the microstructure and interface characteristics of single crystal superalloys during creep process[J]. Acta Physica Sinica, 2011, 60(1): 016102.

孙光爱, 陈波, 吴二冬, 等. 蠕变镍基单晶高温合金 微观结构与界面特征的 X 射线小角散射研究 [J]. 物 理学报, 2011, 60(1): 016102.

- [5] Fratzl P, Jakob H F, Rinnerthaler S, et al. Positionresolved small-angle X-ray scattering of complex biological materials[J]. Journal of Applied Crystallography, 1997, 30(2): 765-769.
- [6] Giannini C, Siliqi D, Ladisa M, et al. Scanning SAXS-WAXS microscopy on osteoarthritis-affected bone—an age-related study[J]. Journal of Applied Crystallography, 2014, 47(1): 110-117.
- [7] Gourrier A, Wagermaier W, Burghammer M, et al. Scanning X-ray imaging with small-angle scattering contrast[J]. Journal of Applied Crystallography, 2007, 40(s1): S78-S82.
- [8] Rinnerthaler S, Roschger P, Jakob H F, et al. Scanning small angle X-ray scattering analysis of human bone sections[J]. Calcified Tissue International, 1999, 64(5): 422-429.
- [9] Schroer C G, Kuhlmann M, Roth S V, et al. Mapping the local nanostructure inside a specimen by tomographic small-angle X-ray scattering[J]. Applied Physics Letters, 2006, 88(16): 164102.
- [10] Li Q, Zhou G Z, Xiao T Q. Research on high accuracy registration of dual energy CT images in synchrotron radiation[J]. Acta Optica Sinica, 2016, 36(4): 0411003.
 李巧,周光照,肖体乔.同步辐射双能 CT 图像的高

精度配准研究[J].光学学报, 2016, 36(4): 0411003.
[11] Xiao T Q, Xie H L, Deng B, et al. Progresses of X-ray imaging methodology and its applications at Shanghai synchrotron radiation facility[J]. Acta Optica Sinica, 2014, 34(1): 0100001.
肖体乔,谢红兰,邓彪,等.上海光源 X 射线成像及其应用研究进展[J].光学学报, 2014, 34(1): 0100001.

- [12] Li L, Han Y, Xi X Q, et al. Single-slice-rebinning reconstruction algorithm with one-sided two helical scans for X-ray CT system[J]. Acta Optica Sinica, 2016, 36(9): 0934001.
 李磊, 韩玉, 席晓琦, 等. X 射线 CT 转台单侧两次 螺旋扫描单层重排重建算法[J].光学学报, 2016, 36(9): 0934001.
- [13] Jensen T H, Bech M, Bunk O, et al. Molecular X-ray computed tomography of myelin in a rat

brain[J]. NeuroImage, 2011, 57(1): 124-129.

- [14] Jensen T H, Bech M, Bunk O, et al. Brain tumor imaging using small-angle X-ray scattering tomography[J]. Physics in Medicine and Biology, 2011, 56(6): 1717-1726.
- [15] Stock S R, de Carlo F, Almer J D. High energy X-ray scattering tomography applied to bone[J]. Journal of Structural Biology, 2008, 161(2): 144-150.
- [16] Stribeck N, Camarillo A A, Nöchel U, et al. Volume-resolved nanostructure survey of a polymer part by means of SAXS microtomography[J]. Macromolecular Chemistry and Physics, 2006, 207(13): 1139-1149.
- [17] Feldkamp J M, Kuhlmann M, Roth S V, et al. Recent developments in tomographic small-angle X-ray scattering[J]. Physica Status Solidi A, 2009, 206(8): 1723-1726.
- [18] Liebi M, Georgiadis M, Menzel A, et al. Nanostructure surveys of macroscopic specimens by small-angle scattering tensor tomography[J]. Nature, 2015, 527(7578): 349-352.
- [19] Hudson H M, Larkin R S. Accelerated image reconstruction using ordered subsets of projection data[J]. IEEE Transactions on Medical Imaging, 1994, 13(4): 601-609.
- [20] Yang Q, Deng B, Lv W W, et al. Fast and accurate X-ray fluorescence computed tomography imaging with the ordered-subsets expectation maximization algorithm[J]. Journal of Synchrotron Radiation, 2012, 19(2): 210-215.
- [21] Siddon R L. Fast calculation of the exact radiological path for a three-dimensional CT array[J]. Medical Physics, 1985, 12(2): 252-255.
- [22] Wang Y R, Leppänen K, Andersson S, et al. Studies on the nanostructure of the cell wall of bamboo using X-ray scattering[J]. Wood Science and Technology, 2011, 46(1/2/3): 317-332.
- [23] Zhong G J, Li Z M, Li L B, et al. Crystalline morphology of isotactic polypropylene (iPP) in injection molded poly (ethylene terephthalate) (PET)/iPP microfibrillar blends[J]. Polymer, 2007, 48(6): 1729-1740.
- [24] Xu H, Xie L, Chen Y H, et al. Strong shear flowdriven simultaneous formation of classic shish-kebab, hybrid shish-kebab, and transcrystallinity in poly (lactic acid)/natural fiber biocomposites[J]. ACS Sustainable Chemistry & Engineering, 2013, 1(12): 1619-1629.