

运动衬度 X 射线成像及其应用

肖体乔^{1,2,3*}, 王飞翔¹, 李可¹, 许明伟^{1,2,3}, 鞠晓璐^{1,2,3}¹上海光源科学中心, 中国科学院上海高等研究院, 上海 201204;²中国科学院上海应用物理研究所, 上海 201800;³中国科学院大学, 北京 100049

摘要 针对复杂体系弱信号的成像难题, 本课题组提出并发展了运动衬度 X 射线成像方法。该方法利用各运动组分对入射光场的调制随时间的演化规律的不同, 将其分离开来、分别成像, 从而消除各组分量间的相互干扰、提高成像灵敏度。低造影剂浓度血管造影、植物微导管输水无造影剂成像、电化学反应离子迁移高灵敏成像等实验结果表明, 运动衬度 X 射线成像可实现传统方法无法实现的有效衬度的复杂体系弱信号成像。因适用于任意波长, 运动衬度成像原理也有望在红外、可见光等其他波段获得广泛应用。

关键词 X 射线光学; 运动衬度; 运动伪影消除; 运动衬度血管造影; 植物微导管输水; 电化学反应离子迁移

中图分类号 O434

文献标志码 A

DOI: 10.3788/AOS202242.1134001

Move Contrast X-Ray Imaging and Its Applications

Xiao Tiqiao^{1,2,3*}, Wang Feixiang¹, Li Ke¹, Xu Mingwei^{1,2,3}, Ju Xiaolu^{1,2,3}¹Shanghai Synchrotron Radiation Facility, Shanghai Advanced Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201204, China;²Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;³University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Abstract Aiming at imaging to weak signal in a complex system, our research team proposes a method called move contrast X-ray imaging, which takes the advantage of the time evolution of modulation of each moving component to incident light field in a complex system, to differentiate the components and image them separately. Accordingly, the mutual interference between components is eliminated and the sensitivity to weak signals is improved significantly. Experimental results of angiography with low agent dose, agent-free imaging of water refilling along microvessels in plant branch, and sensitive tracking to ion migration in a electrolytic cell demonstrate the practicability of move contrast X-ray imaging of weak signals in complex systems while traditional methods fail. The concept of move contrast imaging is applicable to all wavelength, and the proposed method may find extensive applications in imaging of infrared and visible light bands.

Key words X-ray optics; move contrast; elimination of motion artifacts; move contrast angiography; microvessel water transportation in plants; ion migration during electrochemical reaction

1 引言

自然界青蛙、蛇等动物对活动的物体非常敏锐, 但对静止的物体却“视而不见”。仿生学家经长期研

究发现, 蛙眼视网膜的神经细胞分成五类, 一类只对颜色起反应, 另外四类只对运动目标的某个特征起反应, 并能把分解出的特征信号输送到大脑视觉中枢——视顶盖。视顶盖上有四层神经细胞: 第一层

收稿日期: 2022-04-18; 修回日期: 2022-05-01; 录用日期: 2022-05-06

基金项目: 国家重点研发计划(2021YFA1600703, 2021YFF0601203)、国家自然科学基金(81430087)

通信作者: *xiaotiqiao@zjlab.org.cn

对运动目标的反差起反应;第二层能把目标的凸边抽取出来;第三层只看见目标的四周边缘;第四层则只管目标暗前缘的明暗变化。这四层特征就好像在四张透明纸上的图画,叠在一起就是一个完整的图像。因此,青蛙的眼睛对活动的东西非常敏锐,对静止的东西却“视而不见”。基于此,发展了基于蛙眼对运动物体成像仿生的研究^[1-3]。然而,蛙眼这类探测器太复杂,而且绝大部分的运动目标追踪算法都是基于目标特征提取实现的,对于复杂体系中目标特征未被明确记录的情形就无能为力了。采用普通的高帧频探测器实现运动物体的高灵敏成像将在众多领域获得广泛应用。

自伦琴发现 X 射线以来,X 射线便以其良好的穿透能力在医学诊断、材料无损检测领域发挥无可替代的作用。但是,X 射线的强穿透能力又带来了另外一个问题,样品内部显微结构的多重叠加会导致感兴趣对象的衬度严重变差。计算机断层扫描(CT)成像可以通过记录样品的多视角投影来消除重影问题,但该方法原则上只适用于样品内部各组分相对静止的情形。如果投影采集时段内样品各组分内部发生了变化,或各组分之间发生了相对位移,CT 成像就很难正确地重构出样品内部的结构。因此,即便是简单的投影成像,内部结构不断变化样品的 X 射线成像也属于复杂体系成像范畴,通常具有结构复杂、成分复杂、相对运动复杂等特点。随着新一代同步辐射装置和自由电子激光装置的建立和发展,基于空间相干特性的相位衬度、衍射衬度、散射衬度成像技术进一步提高了 X 射线成像的灵敏度^[4-12],但对于复杂体系的成像仍还有较大困难,亟须解决复杂体系成像衬度微弱或消失的难题^[13]。复杂体系具有成分复杂、结构复杂、时变复杂等特点,X 射线成像过程中感兴趣对象与周围组分形成的结构信息、运动伪影和高频噪声杂糅在一起,因互相干扰或信号微弱而无法形成明显的衬度,以至于传统直接成像方法往往无法区分感兴趣目标^[14]。造影标记^[15]、K 边减影^[16]、时间减影^[17]等方法常用于复杂体系弱信号的衬度增强与提取,但仍容易出现运动伪影、高频噪声干扰等问题。当感兴趣对象的信号弱到无法形成可见的衬度时,这些方法也将不再适用。因此,发展更高灵敏度的信息提取方法是解决复杂体系弱信号成像的关键。

基于上述需求,本课题组提出并发展了运动衬度 X 射线成像(MCXI)方法,该方法基于一种新的衬度机制来实现复杂体系弱信号的高灵敏成像^[18]。

区别于传统 X 射线吸收衬度和相位衬度等直接衬度成像方法,运动衬度成像利用感兴趣对象在运动过程中吸收或相位衬度导致的灰度随时间的演化特性成像。这里将运动衬度成像定义为:在成分复杂、结构复杂、相对运动复杂的体系中,利用不同运动组分对入射光场的调制随时间演化规律的不同,将其分离开、分别成像,从而消除各组分间的相互干扰、提高成像灵敏度,实现复杂体系中感兴趣对象的弱信号成像。自 MCXI 方法提出以来,一系列的实验结果表明,该方法大幅提升了复杂体系弱信号成像的灵敏度,在已有成像方法无法给出可观察衬度的场合具有更加突出的优势^[18-20]。本文首先介绍了运动衬度成像原理,接下来介绍了运动衬度 X 射线成像的三个典型应用,包括运动衬度血管造影、植物微导管输水原位动态研究、电化学反应离子迁移特性研究,最后给出了总结和展望。

2 运动衬度成像原理

运动衬度成像是基于阵列探测器像素点灰度随时间变化的频率特征分析实现的,其实质就是时域频谱信号在实空间的映射。结合某特定频率组合下的代表运动强度的幅值信息与运动时序的相位信息,便可对某特定物质进行运动衬度成像,如造影剂灌注血流轨迹、植物沿微导管水输运等。因此,只要以一定的帧率对探测目标记录一段时序图像,然后将其时域频谱信号映射到实空间,便可获得感兴趣对象的运动衬度振幅像与相位像。选择合适的频段即可获得特定运动对象的运动衬度像。X 射线的高穿透性使其具备了厚样品成像的优势,但不同深度、不同组分衬度的叠加会导致感兴趣对象的衬度变差,甚至完全淹没在复杂背景中。X 射线 CT 成像可通过记录样品不同角度的投影来消除这一叠加效应对成像衬度的干扰,但该方法只适用于投影采集时段内结构相对稳定的样品成像。如果在数据采集过程中,样品内部结构发生了变化,传统 CT 成像就无能为力了。将运动衬度与 X 射线成像结合起来,就可以通过其运动特性将不同运动组分区分开来、分别成像,从而消除复杂背景对感兴趣对象的干扰,大幅提升 X 射线成像的灵敏度。

为方便介绍 X 射线运动衬度的理论体系,在探测器上投影图平面建立起一个笛卡儿坐标系,因此投影图中的每个点都有自己的空间坐标 (x, y) ,该点处的灰度值信息可以被描述为 $g(x, y)$ 。如果探测器在一定时间 T (单位为 s)内以帧率 f_{ac}

(frame/s)采集了一个投影图像序列, t 时刻某点处的灰度值可以表达为 $g(x, y, t)$, 这个灰度值通常不会保持不变, 而是随时间的变化而发生涨落。这种随时间推移产生的变化包含了目标介质的运动、周围组织的运动和随机噪声。虽然这些因素在实空间内是相互交织在一起的, 但通过频域展开和分析是可能区分开来的。因此, 对于投影图像中点 (x, y) 处的灰度值 $g(x, y, t)$ 进行离散傅里叶变换:

$$\mathcal{G}(x, y, k) = \sum_{t=0}^{t_N-1} g(x, y, k) \cos\left(\frac{2\pi kt}{t_N}\right) - j \sum_{t=0}^{t_N-1} g(x, y, k) \sin\left(\frac{2\pi kt}{t_N}\right), \quad (1)$$

式中: $\mathcal{G}(x, y, k)$ 为 $g(x, y, t)$ 的离散傅里叶变换; $t_N = T \times N$ 为图像序列的总时间长度, T 为拍摄单张图的时间周期, N 为图像序列的总张数; k 为取值从 0 到 N 的整数。但是, 考虑到余弦函数的奇对称性、正弦函数的偶对称性, $\mathcal{G}(k)$ 和 $\mathcal{G}(N-k)$ 互为共轭, 因此, k 的取值被限制到 $0 \sim N/2$, 对应着时域空间频率 $f_k = k/T$ 。根据式(1), 振幅频谱和相位频谱可以表示为

$$A(x, y, k) = \sqrt{\text{Re}^2[\mathcal{G}(x, y, k)] + \text{Im}^2[\mathcal{G}(x, y, k)]}, \quad (2)$$

$$\varphi(x, y, k) = \arctan \frac{\text{Im}[\mathcal{G}(x, y, k)]}{\text{Re}[\mathcal{G}(x, y, k)]}. \quad (3)$$

因此, 只要以足够高的帧率对探测介质记录一段图像序列, 然后针对特定频率给出振幅频谱和相位频谱的空间分布, 就可以获得运动衬度的振幅图与相位图。振幅图中包含了筛选运动与目标运动的相似程度, 即运动衬度的强弱。相位图中则包含了运动的方向和速度信息。最终通过融合算法获得同时包含运动轨迹、方向、速度信息的运动衬度图。

2.1 运动衬度的振幅图

目标区域中介质的运动导致投影图序列中特定像素点灰度值的变化。不同的运动模式使得 $\mathcal{G}(x, y, k)$ 在频域上存在不同的分布形式。其中, 振幅频谱^[20]可以展开为

$$A(x, y) = A(x, y, 0) + \sum_{k=1}^{k_L-1} A(x, y, k) + \sum_{k=k_L}^{k_U} A(x, y, k) + \sum_{k=k_U+1}^{N/2} A(x, y, k) = A_{\text{ZFC}}(x, y) + A_{\text{LFC}}(x, y) + A_{\text{IFC}}(x, y) + A_{\text{HFC}}(x, y), \quad (4)$$

式中: $A_{\text{ZFC}}(x, y)$ 、 $A_{\text{LFC}}(x, y)$ 和 $A_{\text{HFC}}(x, y)$ 分别代

表频域信号的直流、低频、高频部分; $A_{\text{IFC}}(x, y)$ 则是根据目标介质的运动模式、使用带通滤波器(频率上、下限分别为 k_L 、 k_U)获得的目标频率振幅。类似地, 当调整带通滤波器的上下限与另一种介质运动的频率相符时, 这种运动也可以被运动衬度成像提取出来。这对于提升 X 射线成像的灵敏度有很大的帮助, 因为 X 射线具有高穿透性, X 射线成像的透射图中叠加的信息比其他很多方法都要多, 运动衬度可以将重叠在一起的不同运动组分区分开来, 分别成像。

2.2 运动衬度的相位图

在针对非透明的散射介质的光子迁移成像方法中, 频域的相位偏移量被用作区分信号源到探测器之间的光路, 从而获得了散射介质内 1.2 cm 的成像深度^[21]。相似的理念被引入运动衬度成像的相位图中, 用来提取运动的时域信息。假设, t 时刻运动介质上的某一个像素点 (x_0, y_0) 处的灰度值为 $g(x_0, y_0, t)$, 经过一段时间 Δt 后, 运动介质向一个方向运动了一定距离, 到了位置 (x_1, y_1) , 如果这段时间足够短, 两个位置之间的距离相对较近, (x_0, y_0) 处的灰度值可以近似为“传递”到 (x_1, y_1) 位置, 即

$$\mathcal{G}(x_1, y_1, k) \approx \sum_{t=0}^{t_N-1} g(x_1, y_1, t + \Delta t) \exp\left[-j \frac{2\pi k(t + \Delta t)}{t_N}\right] = \exp\left(-j \frac{2\pi k \Delta t}{t_N}\right) \mathcal{G}(x_0, y_0, k). \quad (5)$$

根据欧拉公式, 这样的变换代表 $\mathcal{G}(x_1, y_1, k)$ 与 $\mathcal{G}(x_0, y_0, k)$ 保持相同振幅, 只是有一个 $2\pi k \Delta t / t_N$ 的相位差, 即

$$\varphi(x_1, y_1, k) - \varphi(x_0, y_0, k) = -\frac{2\pi k \Delta t}{t_N}. \quad (6)$$

根据式(6), 实空间中点 (x, y) 对应的相位值 $\varphi(x, y, k)$ 代表着目标运动在 k 频率下的时间先后顺序, 如果 (x_1, y_1) 和 (x_0, y_0) 两点位于目标介质的运动轨迹上, 则相位信息差值中包含了运动的方向和速度。而如果两点在背景上, 则这个差值只包含了随机噪声。总的来说, 只要筛选的频率 k 与目标运动相符, 相位图 $\varphi(x, y, k)$ 中目标介质的运动轨迹上会有规律的相位连续分布, 而周围的背景上只会存在随机分布的噪声相位。根据式(4), 目标运动的频率一般会有一定的范围 (k_L, k_U) , 而相位图只能同时选择一个频率, 即 $k = k_a$, 所以 k_a 一般选择 (k_L, k_U) 中最具代表性的一个。在已知运动轨迹上

两点的坐标和对应的相位值时,两点之间运动的平均速度^[20]可表示为

$$\bar{v} = \frac{2\pi kS}{[\varphi(x_0, y_0, k) - \varphi(x_1, y_1, k)] \times t_N}, \quad (7)$$

式中: S 为 (x_1, y_1) 和 (x_0, y_0) 两点之间的距离,对于水灌注这种近似阶跃的信号来说, k_a 一般选择 1, 这个情况下,相位图中相位值从 π 下降到 $-\pi$, 对应着运动的起始和终结的时间点。而对于其他高频周期信号, k_a 的选择与运动的周期性频率有关。

因此,运动衬度成像在消除复杂背景对感兴趣对象的影响、大幅提升其成像灵敏度的同时,还可以给出其运动轨迹、运动方向和运动速度信息,与传统的吸收衬度和相位衬度成像相比,在复杂体系成像中具有明显的优越性,有望在生物医学、植物生理学、化学反应、物理相变,以及遥感成像研究中获得广泛应用。

3 运动衬度血管造影

许多疾病的早期阶段,例如中风、高血压、肿瘤血管生成、脊髓损伤和修复等,都与微血管的变化密切相关^[22-24]。啮齿类动物模型(如小鼠)被广泛应用于疾病演化及治疗的临床前期研究,小动物模型远小于人体的体积,决定了其微血管成像需要更高的空间分辨率,同步辐射光源因其高通量密度特性而被广泛用于血管疾病小动物模型的临床前期研究^[25-26]。目前研究通常采用数字减影血管造影术(DSA)来实现微血管成像,利用造影剂灌注前后时刻的影像相减来消除复杂背景的干扰^[27-28]。但由于感兴趣区域邻近组织的非自主运动、造影剂在血管内存留时间短等因素的影响,传统的 X 射线血管造影方法很难实现活体内微血管的高灵敏、高清晰度成像。基于同步辐射 X 射线晶体分光发展的 K 边减影成像可实现血管内造影剂分布区域的实时成像^[28],可消除运动伪影对血管成像的干扰,但造影剂分布不均匀、不连续会直接影响血管成像质量。因此,亟须发展一种能实现完整微血管高分辨成像的 X 射线血管造影术。

目前在临床上,碘造影剂是应用最广泛的血管造影剂,但仍存在大体型患者对比度差、偶发造影剂毒性过敏反应等局限性^[29]。受以上客观因素的限制,对于肿瘤血管生成、高血压或卒中相关的脑微血管病变,以及啮齿动物脊髓血管的活体成像目前仍是一个具有挑战性的任务。因此,开发与迭代更为优越的活体血管造影术将是血管相关生理及病理学研究中持续的研究热点。近年来,国内外众多课题

组针对该问题进行了多方面的尝试,如:首都医科大学和北京解放军总医院的研究团队利用液态金属镓代替碘造影剂在活体兔肝动脉血管造影的实验研究表明,液态金属镓在活体器官血管造影中可显示更为精细的血管分支结构和较高血管组织间对比度,但尚存在较多射线伪影、100%造影剂机体损伤等亟须解决的问题^[30];巴黎综合理工学院、中国台湾清华大学等科研团队利用碘油微乳液、硫酸钡颗粒溶液、金纳米胶体等物质替代碘造影剂成像,小血管的对比度均有一定程度的提高,但在血管网络的完整性上还有一定的改善空间。而且,上述新型造影剂的工艺流程复杂、所用辅助材料毒性较大也是阻碍该方案大规模应用的现实问题^[31-32];上海交通大学杨国源课题组在研究脑卒中和高血压与微血管细微变化的相关研究中使用同步辐射时间减影血管造影方法,该方法仍存在运动伪影无法消除、微血管成像分辨率受限等问题,需要增加双光子共聚焦激光显微镜、离体组织显微 CT 等成像手段进行补充^[33];日本筑波大学的研究团队在利用同步辐射对大鼠进行冠脉成像时,为了降低心率对成像的影响,静脉注射三磷酸腺苷水合二钠(ATP)致大鼠心动过缓(从 388 次/min 降低至 73 次/min),从而得到了数十微米尺度的心血管影像^[34]。在上述活体血管造影成像实验中,活体动物复杂组织结构间的动态复杂干扰使得目标组织中微血管成像更加难以实现。

基于上述原因,提出并发展了一种基于运动衬度 X 射线成像原理的血管造影(MCA)成像方法^[18-19]。该方法的目的是通过时域频谱分析,识别灌注过程中造影剂沿血管运动的特征,将血流信号从其他组织的复杂运动和干扰中分离出来。小动物活体的实验结果表明,运动衬度血管造影方法成功实现了造影剂灌注轨迹即血流、静态复杂背景、邻近组织器官和高频噪声等单独成像,从而消除其相互干扰,大幅提高了微血管成像的对比度和分辨率。进一步的灵敏度测试实验结果表明,即使将造影剂中碘的质量浓度降低一个量级即稀释到原质量浓度的 10%,仍能实现小动物活体脑部微血管系统的完整成像。MCA 的高灵敏、低造影剂量特性,有望用于肾功能不全、造影剂高风险(如糖尿病)和造影剂过敏等疾病的临床前期研究。利用灌注全过程的时域动态信号重构图像,MCA 可实现造影剂在血管内部运动轨迹的完整成像。实验结果表明,该方法成功实现了动、静脉血管系统的分别成像,从而消除不同微血管系统的相互干扰。此外,对于脉冲灌注

(如输尿管)的微管道造影成像,传统 DSA 很难获得其完整影像,利用 MCA 方法则可以实现小鼠输尿管的清晰成像。因此,MCA 可为血管疾病小动物模型的临床前期及相关血流动力学研究提供一个全新的手段。由于运动衬度成像对造影剂导致的吸收变化敏感,MCA 可有效抑制运动伪影,并会显著提升对造影剂的灵敏度以及微血管成像效果。MCA 基于同步辐射 X 射线光源甚至是 X 光管,可实现活体啮齿类动物微血管的高分辨率、高信噪比成像。而且,MCA 的数据采集方式与目前临床 DSA 类似,有望应用到临床诊断。

在上海同步辐射光源装置生物医学成像线站(BL13W1)上进行的运动衬度血管造影成像实验结果如图 1 所示,活体小鼠实验结果表明,运动衬度结合灌注扫描方式可大幅提高微血管成像质量和效率^[18]。在图 1(a)所示的原始血管造影影像中,通过注射造影剂来增强血管,但由于小鼠颅骨和其他背景组织的叠加,血管影像的可见度严重退化,很难辨

认出完整连贯的血管影像。而且随着小鼠的呼吸和抽搐,在造影剂灌注过程中,即使已进行麻醉处理,血管仍出现明显的伴随性移动。对于活体成像来说,这些组织的运动通常是不可避免的,对静态背景进行简单减影很难实现血管系统的高对比度和高分辨率成像。但运动衬度血管造影方法基于原始血管造影图像中血流和运动组织在时域上的运动频率进行区分,有效抑制了活体小鼠的呼吸、颤动所带来的伪影,实现了自适应减影成像效果,成像分辨率和信噪比得到了大幅度提高。在 MCA 方法中,血管组织(圆形点)的信号强度主要集中在低频,运动组织(方形点)的时域信号强度主要集中在较高频域,如图 1(b)~(g)所示,经过频谱分离后,血管、运动组织可独立成像。这样便可以从原始血管造影数据中提取出不受其他组织和噪声干扰的血流灌注信号即血管。图 1(i)为 MCA 提取后的小鼠大脑内中动脉影像,其中血管网络完整,成像信噪比和空间分辨率较高,噪声及其他背景组织结构被明显去除。

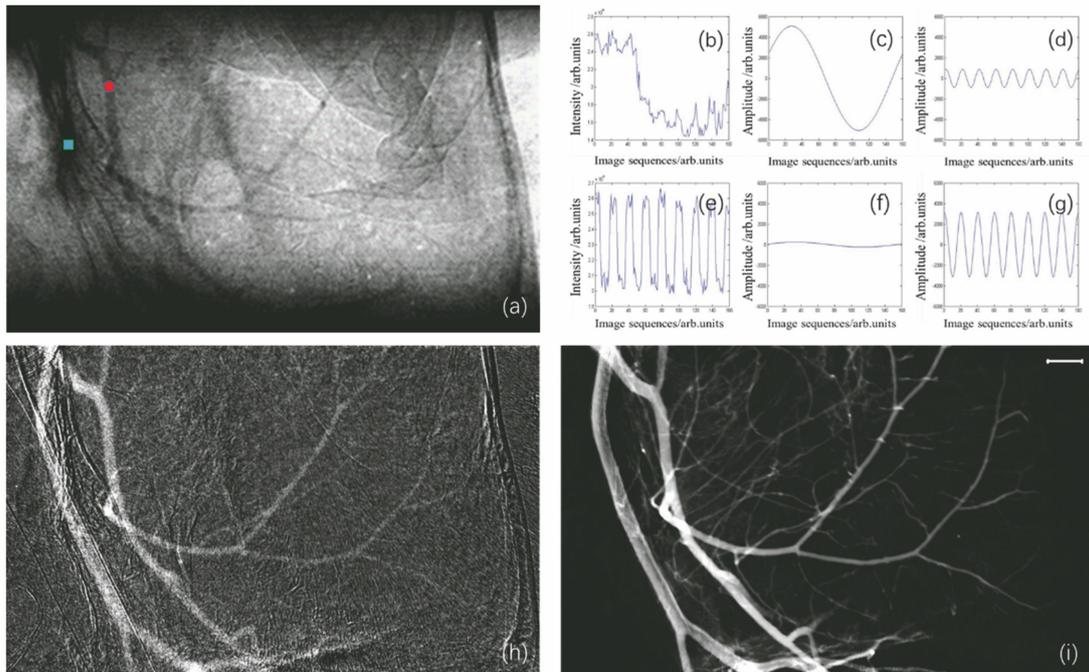


图 1 运动衬度血管造影小鼠模型同步辐射 X 射线成像验证结果^[19]。(a)传统血管造影;(b)血管[图 1(a)中圆形点]的时域灌注数据;(c)血管的低频解析数据;(d)血管的高频解析数据;(e)血管邻近组织[图 1(a)中方形点]的运动伪影数据;(f)邻近组织的低频解析数据;(g)邻近组织的高频解析数据;(h)时间减影成像图;(i)运动衬度血管造影(标尺长度 500 μm)

Fig. 1 Move contrast angiography verified with synchrotron radiation X-ray imaging of model mouse^[19]. (a) Traditional angiogram; (b) time-domain perfusion data of vascular tissue denoted with circular dots in Fig. 1(a); (c) low frequency interpreting data of vascular tissue; (d) high frequency interpreting data of vascular tissue; (e) motion artifact data of adjacent tissue denoted with square dot in Fig. 1(a); (f) low frequency interpreting data of adjacent tissue; (g) high frequency interpreting data of adjacent tissue; (h) temporal subtraction image; (i) move contrast angiogram (scale bar is 500 μm)

活体小鼠的实验结果验证了运动衬度血管造影的有效性。在小动物模型研究的基础上,进一步研究了 MCA 的临床应用潜力^[19]。在验证过程中,原始血管造影序列数据取自临床数字减影血管造影系统,MCA 重构的运动衬度血管造影如图 2 所示。在本例中,成像区域为人脑区域和人髂股动脉区域。造影剂灌注峰值的原始影像分别如图 2(a)、(b)所示。采用 MCA 方法对血管造影图像序列进行血管

重建,结果如图 2(c)、(d)所示。图中以伪彩色的方式编码运动衬度血管造影动态信号的相位值。该相位值反映了造影剂在血管中灌注的顺序,从而直观地显示了血管灌注的动态变化过程。该实例表明,运动衬度血管造影方法与目前临床应用的血管造影设备相兼容,并可重建血管的精细结构,提供更丰富的血流动力学信息。

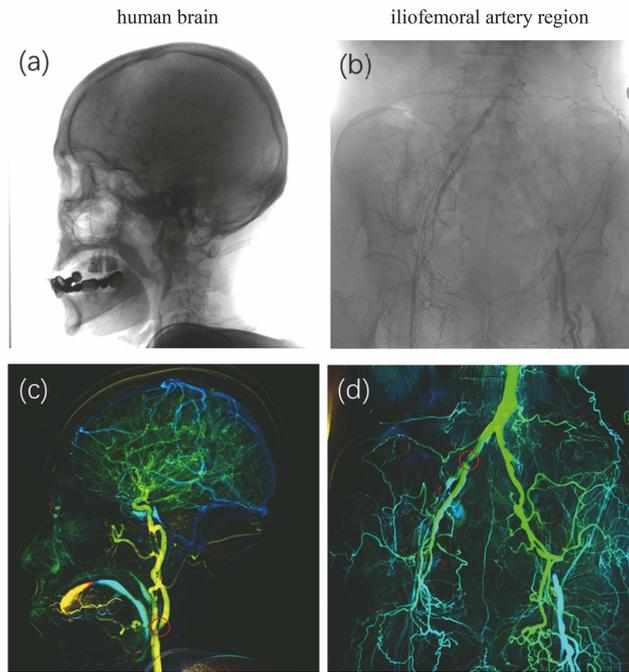


图 2 运动衬度血管造影临床数据验证^[19]。(a)(b)原始投影图;(c)(d)运动衬度血管造影图像

Fig. 2 Move contrast angiography verified by clinical data. (a)(b) original data; (c)(d) move contrast angiography

综上所述,运动衬度 X 射线血管造影方法适用于活体生物微血管高可见度的完整成像,其较高的灵敏度将进一步降低现有血管造影成像中的辐射剂量和造影剂使用量,为血管相关疾病的临床前在体研究和新型造影剂评价提供了一个全新工具。利用运动衬度 X 射线成像高灵敏度的特点,该方法还可用于小动物活体血管的无造影剂成像^[20]。

4 植物沿微导管输水的原位动态研究

植物的长距离水运输对植物生理学研究具有重要意义,其依赖于木质部导管中连续水柱形成的负压^[35-36]。而处于张力下的水属于亚稳态,容易发生空穴化和栓塞,导致水输运量下降、营养物质不足,最终导致植物死亡^[37]。但受观测技术的局限性,木质部导管栓塞和再灌注的机制仍缺乏原位研究的直接证据。因此,在植物缺水后重填充过程中,原位观察到灌注位置水在重填充过程中的位置变化是必要

且迫切的。

为解决植物内部水运输机制这一困扰植物学家和物理学家数百年的难题,人们采用多种成像方式观察植物中水的运输过程,最早也是最广泛使用的方法是光学显微镜。光学显微镜的空间分辨率足够高,可以观察到微导管内水运输状态。然而,有限的穿透能力使得可见光只适用于离体植物样品的切片检查,无法用于活体植物的原位观测^[38-39]。借助于核磁共振对水中氢元素的敏感性,利用核磁共振成像可以获取植物茎秆中水的三维分布^[40],但是受核磁共振成像的技术限制,该方法的时间分辨率一般低于 3 min,空间分辨率一般低于 50 μm 。考虑到栓塞后的导管在几十秒到几分钟内就可以完成重填充^[41],核磁共振的成像时间还是太长。由于轻元素对中子的吸收截面较重元素大,研究人员利用氧化氘(D_2O)作为示踪剂进行中子成像实验以研究植物输水特性^[42],但是空间分辨率只能达到 100 μm ,且

拍摄时间长达 5 min。

X 射线相衬成像具有高时间、空间和密度分辨的优异特性,所以人们较多地使用 X 射线相衬成像研究植物的水输运过程。植物中的水和组织细胞组成元素类似,在不加造影剂的情况下难以获得足够的成像衬度,添加造影剂又破坏了植物的水输运状态。另一方面,植物茎秆内密集分布的维管束会使导管内水灌注对入射 X 射线吸收变化信号造成严重干扰并使其衰减。虽然这种叠加效应可以被 X 射线显微 CT 解决^[43-44],而且最新的 X 射线动态 CT 技术可以获得高的空间分辨率和时间分辨率^[6],但植物体内水和周围组织的密度极为接近,通常需要碘造影剂提升与周围组织的衬度^[45],而这样无疑将打破植物内部的渗透压平衡,影响植物输水的自然状态。近年来,有研究人员将磁共振成像(MRI)图像与 CT 图像融合,间接获得水在葡萄藤中的位置和流量分布,但是受 MRI 在时间和空间分辨率上的限制,该方法依旧无法精确观察到水的输运过程^[46]。总之,目前缺少能对植物输水过程进行原位、高时空分辨、高衬度的三维成像方法,这极大限制了该领域的发展。

已有的成像方法不能在植物的自然状态下原位

地观察到植物茎秆内部空穴化后水再灌注的过程,并且不能保持高的空间分辨率和时间分辨率。上海光源 X 射线成像组将运动衬度成像方法应用在可见光/叶片、X 射线/叶片、X 射线/茎秆三组体系中,不仅验证了该方法的可行性,还根据定量分析的结果,总结出缺水植物沿微导管重填充过程的多项时间和空间特性。

4.1 植物叶片可见光成像

利用品红溶液对竹子叶片内木质部导管中水输运过程进行可见光成像,以直观验证运动衬度成像对导管内水分输送的成像能力^[20]。竹叶有密集明显的维管束,当经过品红溶液染色的水沿着管道向上传输时,使用可见光相机进行记录以备后续的运动衬度分析。在开始实验之前,采集下来的竹叶被放置在温度为 23 °C、相对湿度为 40% 的空气中进行空穴化处理 1 h。竹叶被固定在特质的样品架上竖直向上,如图 3(a)所示。1 mL 质量浓度为 5 g/L 的品红溶液被注射到靠近叶片切口的位置,方便叶片从切口位置吸入液体。进行图片采集的是一台普通手机上的相机,采集帧率为 2 frame/s,一共采集了 256 张图。从图中可以看出,品红溶液流经的导管出现了明显的红色。

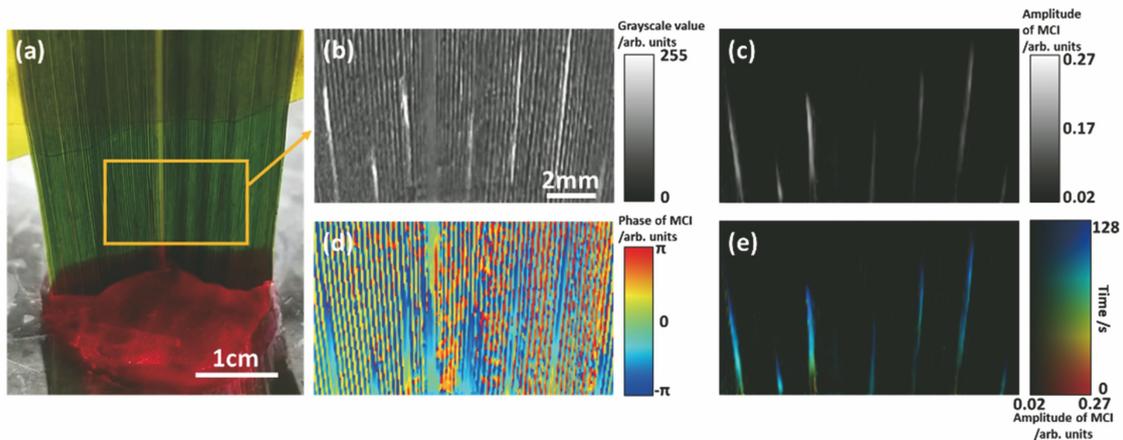


图 3 运动衬度成像的可见光验证实验^[20]。(a)染色剂流经叶片导管时的照片;(b)序列首尾两张图的数字减影图;(c)运动衬度的振幅图;(d)运动衬度的相位图;(e)水输运过程的运动衬度图

Fig. 3 Move contrast imaging verified experimentally with visible light^[20]. (a) Photograph of bamboo leaf with dyed water transmitting along vessels; (b) digital subtraction image acquired with the first and last frames in image sequence; (c) move contrast amplitude image; (d) move contrast phase image; (e) move contrast image of water transport along vessels

图 3(b)展示了利用序列首尾两张图片计算得到的数字减影图。叶片在吸水过程中有缓慢舒展的过程,导致图中白色的水输运轨迹旁边还有大量或明或暗的伪影,进而影响成像的信噪比。相比之下,运动衬度的振幅图[图 3(c)]不仅将品红溶液的输

运轨迹提取出来,还保持了相对纯净均一的背景。这意味着,运动衬度成像可以消除相邻组织在其他时间频率运动时的干扰,从而获得高对比噪声比的水输运的轨迹图。结合图 3(d)给出的运动衬度的相位图,得到最终的运动衬度图如图 3(e)所示,其

中水运输的轨迹以及先后顺序被同时显示出来。从结果中可以看出,虽然叶片中密集排列着一系列导管,但是只有其中一部分在水运输中起到了作用。并且,这些导管对水的运输也存在先后和速度快慢的差异。

4.2 植物叶片 X 射线成像

相对于可见光,X 射线对植物产生的衬度更低,透射造成的前后叠加更加严重,以至于大多数利用 X 射线对植物内水灌注的研究都是以叶片为研究样本。实验将首先在叶片中证明运动衬度相对于传统 X 射线成像方法的优势,并初步给出利用运动衬度成像对水灌注特性进行定量分析的方法。

实验在上海光源 X 射线成像及生物医学应用线站(BL13W)进行。实验样品为一片从茎秆连接处切下的玉米叶片,切下后立刻将其置于温度为 23 °C、相对湿度为 40% 的空气中进行 40 min 空穴化。然后,叶片被固定在特制的样品架上竖直朝上,下端有一个方形水池。X 射线的光子能量被设置为 18 keV,探测器被放置在样品后 15 cm。探测器像

素阵列大小为 2048×2048 ,等效像素尺寸为 $0.65 \mu\text{m}$ 。探测器的曝光时间设置为 0.5 s,帧率为 2 frame/s。从水注入水池开始,在 64 s 内记录了 128 帧水灌注的过程。使用序列的首尾两张图计算得到的数字减影成像(DSI)图如图 4(a)所示。虽然在繁杂的背景噪声中,水灌注的轨迹还是可以识别的,但是由于图像信噪比较低,因此可以提供进一步分析的空间有限。运动衬度成像的振幅图如图 4(b)所示,相较于数字减影成像,运动衬度成像具有多方面的优势。为了定量地给出两种方法的对比结果,图 4(a)、(b)中同一位置两条直线的灰度值被提取出来,其水平分布如图 4(d)所示。一方面,在引入衬噪比(CNR)参数后,运动衬度的 CNR 为 6.33,而相较之下,数字减影图的 CNR 只有 0.54,换言之,水灌注的信号放大了 12 倍。另一方面,运动衬度还清晰地保留了灌注边界的锐利,从测量结果来看,运动衬度振幅图中灌注轨迹的直径为 $31.9 \mu\text{m}$,十分接近数字减影的 $30.6 \mu\text{m}$ 直径,这也验证了运动衬度成像空间分辨的可靠性。水灌注过程的运动

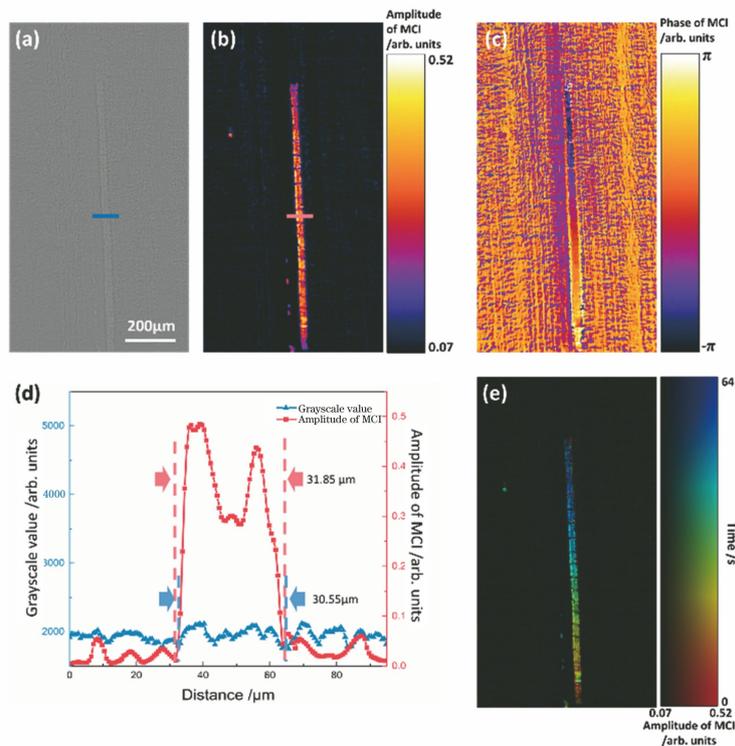


图 4 玉米叶片实验中运动衬度与数字减影成像的对比^[20]。(a)数字减影图;(b)运动衬度的振幅图;

(c)运动衬度的相位图;(d)图 4(a)、(b)中同一位置直线处的强度分布曲线;(e)同时包含时间和位置信息的运动衬度图

Fig. 4 Comparison between MEXI and DSI of water refilling along xylem vessel of maize leaf^[20]. (a) Digital subtraction image; (b) move contrast amplitude image; (c) move contrast phase image; (d) intensity profiles at the same position denoted by two lines in Figs. 4(a) and 4(b); (e) move contrast image containing both time and position information simultaneously

衬度相位图如图 4(c)所示,其与振幅图融合后完整的运动衬度图如图 4(e)所示,其中颜色代表了灌注的时间先后顺序,而亮度代表了振幅图中的强度值。从图中颜色的渐变过程可以看出,运动衬度图提取的运动信息与实际图像序列展示出的结果相符合。

4.3 植物茎秆 X 射线投影成像

相对于只有几十到上百微米厚的叶片来说,植物的茎秆直径通常在 mm 到 cm 量级,此外,除了厚度的增加,木质部维管束的交错叠加强对 X 射线运动衬度成像的可行性提出了更大的挑战。茎秆验证实验的样品为一根直径为 5.5 mm 的柳树枝条,探测

器的有效像素大小为 $3.25 \mu\text{m}$ 以保留足够的视场大小。为了匹配茎秆中水灌注的高速运动,探测器的帧率被提升至 100 frame/s。最终,32 s 内的 3200 张投影被采集下来用作运动衬度成像分析。

实验装置示意图如图 5(a)所示。从图 5(b)中的柳条横切片光学显微镜图可以看到,其木质部中密集分布着大量的维管束,统计发现,这些导管的平均直径在 $68.5 \mu\text{m}$ 左右。相对 5.5 mm 直径来说,一根导管在水灌注之前和之后造成的灰度值差别仅有 0.8%,而传统 X 射线成像方法的灰度探测极限在 1.8%左右,灰度值的变化已经远低于探测极限。

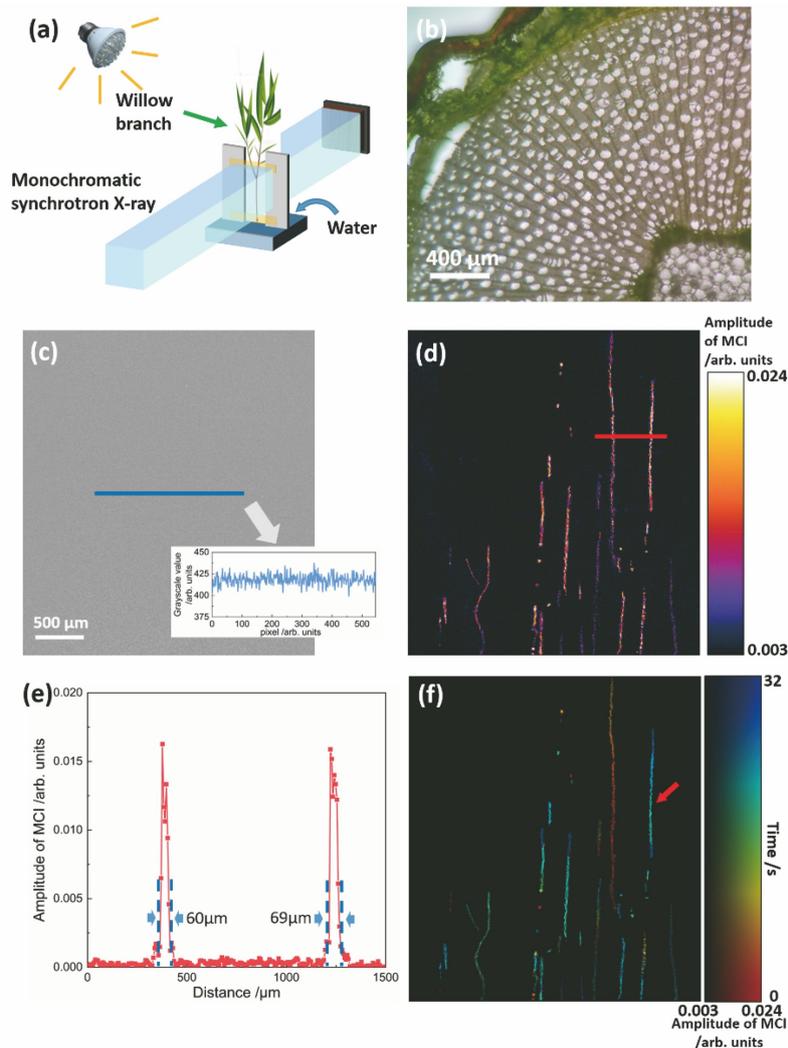


图 5 X 射线运动衬度对柳条水灌注过程的成像^[20]。(a) 实验装置示意图;(b) 柳条横截面的光学显微镜图;(c) 图像序列首尾两张计算得到的数字减影图;(d) 运动衬度的振幅图;(e) 图 5(d) 中直线位置的灰度值分布;(f) 包含灌注轨迹和时间信息的运动衬度图

Fig. 5 Move contrast X-ray imaging for water refilling in willow branch^[20]. (a) Diagram of experimental setup; (b) microscopic image for cross-section of willow branch; (c) digital subtraction image with the first and last frames of image sequence; (d) move contrast amplitude image; (e) gray value profile at position indicated by line in Fig. 5(d); (f) move contrast image containing track and chronological information of water transport along xylem vessels

所以,在如此厚的茎秆中,一根细小的导管中水灌注的运动信号是一个极其微弱的信号。图 5(c)为对图像序列的首尾两张图进行数字减影成像的结果,从图中可以看出,虽然维管束和茎秆边缘的影响被消除了,但是完全观察不到导管内水灌注的痕迹,这也符合之前对于信号强弱和探测极限的预估。

使用全部 3200 张投影图进行运动衬度成像的振幅图如图 5(d)所示,显然,水灌注的轨迹被清晰地提取出来。直线位置处的强度值分布如图 5(e)所示,两组虚线标示出两条导管内水灌注轨迹的边界,其宽度分别为 $60\ \mu\text{m}$ 和 $69\ \mu\text{m}$,与光学显微镜测量的 $68.5\ \mu\text{m}$ 平均直径相符。此外,图 5(b)中两根导管在图 5(a)中所处位置的衬噪比为 2.12 和 2.18,相比之下,数字减影图[图 5(d)]中相同位置处的衬噪比只有 0.07 和 0.068,其值远小于 1,说明数字减影成像无法提取出水灌注的有效信号。

通过将运动衬度的振幅图和相位图融合后,得到了同时包含灌注时间和位置信息的运动衬度图,如图 5(f)所示。从灌注轨迹的颜色分布可以明显看出,木质部导管中水开始灌注的时间不尽相同。此外,由灌注轨迹可知在大多数导管中,水从下到上灌注,这也符合植物从根部向上输水的常识。但与之不同的是,图 5(f)中箭头标注的灌注轨迹表明水从中间开始填充,然后向两端灌注。

4.4 运动衬度 CT 及其微导管输水三维成像

对于二维成像来说,运动衬度成像获得了良好的识别效果,但是厚样品在投影图中的信号堆叠效应,使其无法获得运动组分的空间分布。动态 CT 技术能够获得样品的 4 维时空信息,但是对于微弱的动态信号来说,成像衬度太低,虽然通过增加光通量或曝光时间可以在一定程度上提高成像的衬度,但是随之而来的问题是高辐射剂量和低时间分辨率。运动衬度成像对动态信号具有高灵敏性,在低于常规成像所需光通量的情况下即可对特定运动信号进行成像。因此,通过将其与动态 CT 技术相结合,可发展出运动衬度 CT 成像(MCXCT),从而实现对运动信号的低剂量、高时空分辨、高衬度四维成像。运动衬度 CT 有两种实现方式:投影重构法和体素重构法。投影重构是利用同一角度拍摄所得投影图进行运动衬度重构,得到该角度下的运动衬度图像,再将所有角度下的运动衬度图像进行 CT 重构,即可获得运动组分的三维分布。该方法的数据计算量小,重构速度快。体素重构法在数据采集完成后先进行动态 CT 重构,再在体素动态数据上进

行运动衬度重构,从而获得运动组分的三维分布。该方法简单直接,但是数据计算量较大。

瞄准自然状态下植物茎秆微导管水输运过程的三维动态观测,上海光源 X 射线成像组基于 X 射线通用成像线站(BL13HB)建立了运动衬度 CT 实验方法。通过将运动衬度成像原理与动态 CT 方法相结合,系统建立了数据采集流程和运动衬度 CT 图像重构方法,并采用扦插植物茎秆样品测试了系统的有效性。实验选用直径为 2 mm 的柳条作为样品研究植物扦插过程中的水输运过程,实验装置如图 6 所示,箭头表示 X 射线的传播路径,方框标出了拍摄的感兴趣区域。首先将柳条切断空化约 1 h 后固定于样品支架上,向支架内加水,使其淹没柳条后立即开始进行拍摄,样品台转速为 240 r/min,探测器的拍摄帧率为 1000 frame/s,像素尺寸为 $2.5\ \mu\text{m}$,拍摄时长为 7.75 s。数据采集完成后,通过 PITRE 软件进行相衬 CT 的重构^[47],采用科学计算软件 Matlab R2019a 对切片进行运动衬度重构,得到柳条微导管中输水信号的 4 维时空分布。



图 6 实验装置照片

Fig. 6 Photo of experimental devices

柳条中输水信号的分布如图 7(a)所示,该图给出了时间分辨率为 125 ms 和空间分辨率为 $2.5\ \mu\text{m}$ 的柳条输水信号时空分布。图 7(b)给出了 MCXCT 和 CT 切片的图像融合结果。MCXCT 重构体素与原始 CT 中所有体素的位置一一对应,证明柳条扦插过程中水主要沿导管运输,且水流的直径一般比导管直径略小。另外,根据每个体素的相位值和所在切片的高度,可以获得每一根导管内输水信号的高度随时间变化的曲线,图 7(c)列出了三个典型的例子,可知植物茎秆中一般有以渗透为主(osmosis type)、以沿导管运输为主(vessel type)和渗透与沿导管运输相结合(mixed type)这 3 种输水方式,且运输方向以向上为主,通过对沿导管运输类型的信号进行直线拟合便可得到水的输运速度。

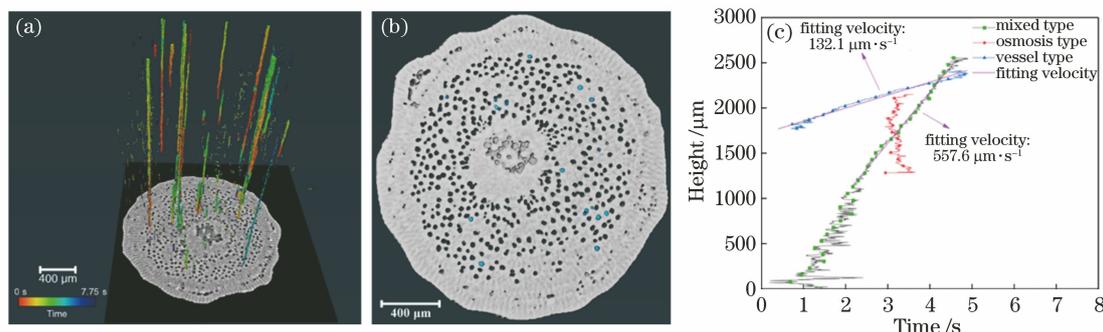


图 7 运动衬度 CT 实验结果。(a) 柳条输水信号的 4 维时空分布;(b) MCXCT 切片与传统 CT 重构切片融合;(c) 三种典型输水信号的高度-时间分布曲线

Fig. 7 Experimental results for move contrast CT. (a) Four-dimensional distribution of water transport signal in willow branch; (b) fusion of MCXCT slice with traditional CT slice; (c) height-time curves for three typical water transport signals

该研究发现柳条在扦插过程中水并非单纯地沿导管自下而上运输,而是以渗透行为居多。当导管发生空化时,水从导管周边不同高度的组织点渗透至导管内,当渗透的水滴逐渐增多至相互接触后形成稳定的水柱,水柱再以一定的速率沿导管向上运输。MCXCT 能以前所未有的时空分辨率实现对植物输水过程的原位动态成像,为相关研究领域提供了一种强有力的研究手段。

5 电化学反应离子迁移成像

离子迁移特性对电化学反应、电解反应机理研究至关重要,是电池、电解池研究关注的热点。考虑到实验条件的可控性,多以电解池模型研究离子迁移过程的原位动态表征。电解池是将电能转化成化学能的一个装置,主要由外加电源、电解液和电极构成,通电后电解液产生的电场力使得阴极和阳极之间产生离子迁移和氧化还原反应。电极表面的电子转移过程是电化学反应的核心,外加电场对电解质在电极表面迁移扩散过程的调控则是电化学反应发生的前提。研究电极附近电解质的迁移过程,对电极设计^[48]、催化过程^[49]、动力电池^[50]等领域的研究具有重要意义。传统电化学检测技术可实现对电极表面电荷转移过程的探索,却无法提供更多关于电解反应离子迁移过程的详细信息。如何实现在电化学反应过程中的电活性物质迁移过程的动态监测,揭示电极-电解质界面在电场调控下的不同状态,是进一步理解离子迁移扩散过程对电极表面电化学反应进程影响的关键。为弥补传统电化学检测技术在电极-电解质界面检测方面的局限,通常需将其与其他检测技术[如傅里叶变换红外光谱仪光谱(FTIR)^[51]、拉曼光谱^[52]、扫描隧道显微镜

(STM)^[53]、透射电子显微镜(TEM)^[54]、X 射线谱学^[55]、X 射线荧光^[56]、X 射线衍射^[57]等技术]结合,以实现电极反应过程中电极-电解质界面的原位检测。这些方法可以提供电极表面反应进程及电活性物质在电极表面吸附构型演变的相关信息,却无法进一步对动态条件下(电场)电解质溶液的扩散过程进行可视化。针对该问题,上海光源 X 射线成像研究团队对运动衬度高灵敏度动态成像在电解反应中离子迁移过程可视化方面的潜力进行了尝试性的探索^[58]。

为方便实验条件的控制,该探索实验设计了电解池模型来研究电解液中的离子迁移特性,通过调节外接电源的电压来调节迁移离子的数量。电解池阳极材料是 Ag,阴极材料是 Cu,以 $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$ 溶液为电解液,其中电解液中 Cu^{2+} 的质量浓度为 0.6%,电解池厚度为 6.7 mm。通电后阳极发生 Ag 的氧化反应、失电子溶解成 Ag^+ , Ag^+ 受电场力作用向阴极移动,到达阴极后获得电子并在阴极发生还原反应、析出银原子。实验在上海同步辐射装置的 X 射线成像和生物医学应用线站 BL13W1 上进行。光束线采用 wiggler 光源,选用 Ag 元素的 25.6 keV K 吸收边后能量为双晶单色仪的输出能量^[59]。探测器的有效像素尺寸为 $6.5 \mu\text{m}$,单张投影影像的曝光时间为 10 ms。

对电解池进行 0.6 V 稳压通电,观察内部电化学反应和离子迁移过程,图 8 分别是常规二维时间减影成像和运动衬度重构的关键帧分析。

图 8 中分别是拍摄 1, 4, 7, 10 s 时电解池内的瞬时状态,对应着电解池内电化学反应的 4 个不同反应阶段。在时间减影成像中,电解反应的初期[图 8(a)],电解池内电压逐步上升,前 4 s 几乎观察

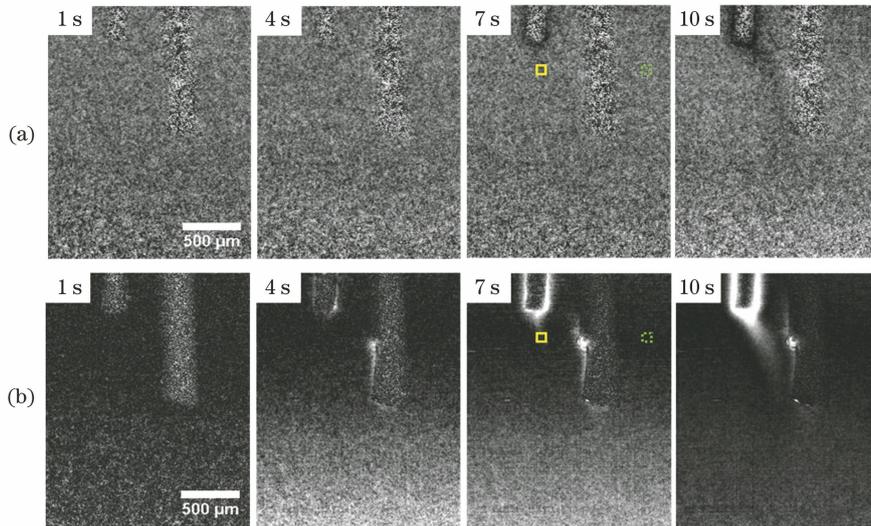


图 8 0.6 V 电压通电后电解池化学反应的动态 X 射线成像。(a) 传统动态时间减影成像获得的 1~10 s 关键帧分析；(b) 运动衬度成像重构的关键帧分析

Fig. 8 Dynamic X-ray imaging of electrochemical reaction after electrolytic cell is applied on a voltage of 0.6 V. (a) Keyframes of traditional temporal subtraction imaging at time period of 1–10 s; (b) reconstructed keyframes of move contrast imaging

不到离子迁移的迹象,在 7 s 以后可以观察到阳极银元素的氧化析出现象和 Ag^+ 迁移轨迹,受尖端放电效应的影响,阳极的氧化反应主要集中在其末端,之后受到重力和电场力的影响, Ag^+ 开始迁移。但在运动衬度成像中,如图 8(b) 所示,阳极 Ag^+ 的析出与迁移在第 4 s 时就能明显地观察到,在 7 s 之后两种方法观测到的离子迁移轨迹一致,这说明了运动衬度成像对图像信号分析的正确性,但运动衬度成像技术观测到的离子迁移信号具有更高的信噪比,迁移轨迹更加锐利。对于阴极的还原过程,通电 4 s 时,右侧阴极靠近阳极区域有离子聚集并形成包络。这说明此时阴极已经开始出现电化学反应过程中的离子还原现象,且衬度增强现象随着时间的推移越发明。然而,图 8(a) 的减影方法对阴极还原过程的观测几乎完全失效。通过引入衬噪比,可定量计算运动衬度成像技术对衬度和信噪比的提升^[60],选择通电 7 s 时图像中实线方框感兴趣区域进行分析对比,选择信号比较稳定的虚线方框区域为背景区域。在常规时间减影成像中,感兴趣区域的衬噪比为 0.57,运动衬度成像同一区域的衬噪比为 1.59,运动衬度成像技术相比时间减影可以将衬噪比提高 2.79 倍左右,能以更高的衬度、更高的灵敏度提取动态信息。这表明了运动衬度成像对离子迁移、聚集现象的探测相比传统时间减影成像更具有优势。

在通电初期,电压从 0 V 升高至 0.6 V 需要短暂的时间,在这个时间段,离子迁移是一个从弱到强

的过程。对通电前 1.2 s 内的图像进行分析,观察是否可以探测到极弱电场下的离子迁移轨迹,以进一步考察运动衬度成像在电化学反应过程动态观测中的灵敏度。图 9 分别是常规动态二维减影成像和运动衬度重构在 300,600,900,1200 ms 内的关键帧分析。为了提高对比度,使结果更加直观,在此采用了像素值的伪彩色编码处理。

该时间段内,阳极材料 Ag^+ 析出的数量较少、还未扩散到溶液中时,电解液内部主要以 Cu^{2+} 的氧化还原反应为主。如图 9(a) 所示,在通电初期,传统时间减影成像得到的结果中噪声很强,无法分辨出电解池内部电化学反应过程中离子的迁移和聚集。运动衬度成像方法具有可将微弱信号与高频噪声分开成像的优势,可以完全消除噪声对离子迁移和原子积聚过程成像的影响。图 9(b) 给出了电化学反应初期的运动衬度成像结果,分别给出了 300,600,900,1200 ms 时间节点发生氧化还原反应的空间分布。在电源接通最早的 300 ms 时间节点,氧化还原反应在整个电解池内所有位置同时发生,在电极部位和电解池底部的反应最密集。电极部位是电子交换最活跃的场所,同时也应该是离子还原反应密集的区域。随着时间的推移,电流逐步增强,参与氧化还原反应的离子也越多,因而电极区域运动衬度信号也更强。还原反应向电解池底部积聚的现象可以解释为:受重力的影响,未通电阶段电解池底部的 Cu^{2+} 浓度相对较高,通电后其氧化还原反应也越密集。随着通电时间的延长,溶液中的 Cu^{2+} 受到电

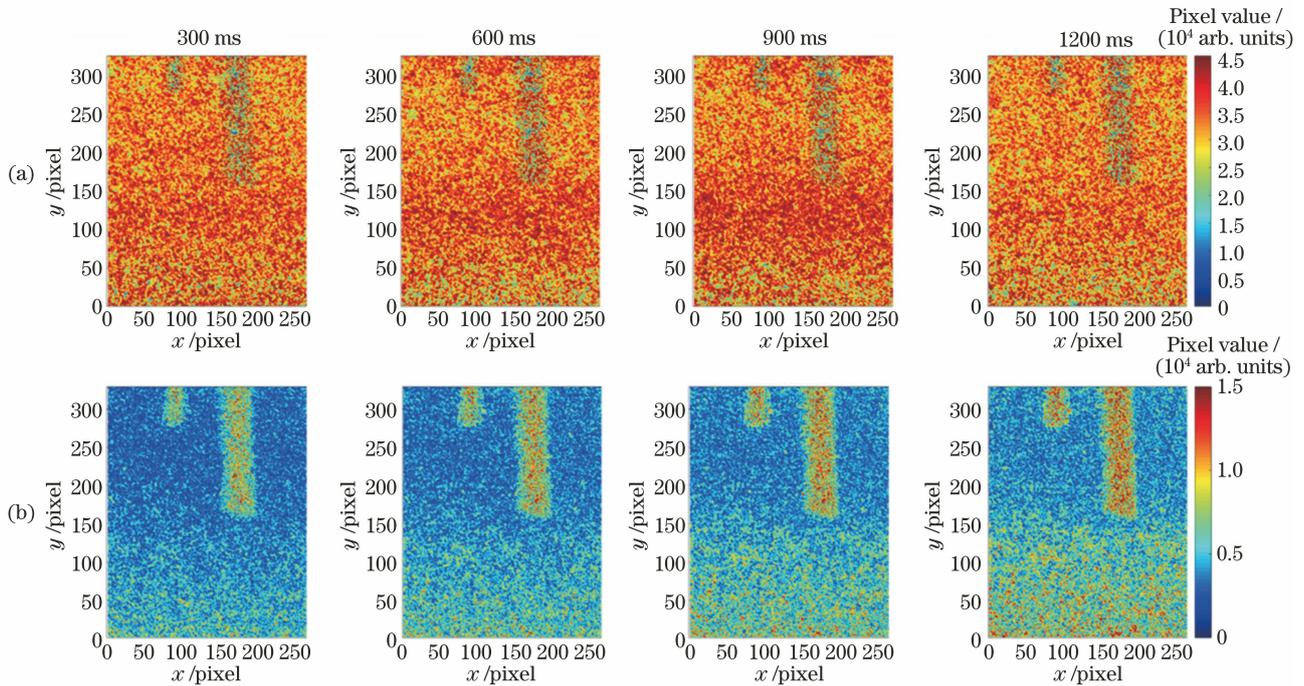


图 9 0.6 V 电压通电初期电解池内的电化学反应。(a)传统动态时间减影成像分别获得的 300,600,900,1200 ms 关键帧伪彩色分析结果;(b)运动衬度成像重构的 300,600,900,1200 ms 关键帧伪彩色分析结果

Fig. 9 Electrochemical reaction in electrolytic cell with voltage of 0.6 V at initial stage. (a) Pseudocolor analysis results of keyframes of 300, 600, 900, and 1200 ms obtained by traditional temporal subtraction X-ray imaging; (b) pseudocolor analysis results of keyframes of 300, 600, 900, and 1200 ms obtained by move contrast X-ray imaging

场力的作用开始产生向上迁移,与此同时还原出来的 Cu 原子失去电场力作用、受重力影响向电解池底部沉积,因而电解池底部有明显的运动衬度信号增强的情况。该实验结果表明,运动衬度成像可消除高频噪声的影响,显著提高 X 射线成像原位观测电化学反应过程的灵敏度和信噪比,实现传统时间减影方法无法给出有效衬度的初期电化学反应过程成像。

另一方面,当电解池电源的电压值足够低时,由于参与反应的离子迁移或还原数量较少,传统成像方法很难实现有效衬度。从实验结果可以看出,将电压值设定为临界值 0.5 V 时,传统时间减影方法已无法观测到明确的离子迁移信号。这意味着,该实验也可以进一步测试运动衬度成像的有效性。图 10 给出了两种方法在 0.5 V 电压下的电化学反应成像结果,分别为通电 1,6,12 s 时间节点的传统吸收衬度和运动衬度像。

从图 10(a)所示的常规时间减影成像并不能观察到电解的反应过程,即使是在通电 12 s 时也无明显信号。然而,图 10(b)的运动衬度成像显示,通电 6 s 时就可以探测到阳极材料附近的离子聚集,同时阴极靠近阳极区域也产生了衬度增强现象,这说明

此时阳极 Ag 材料已经开始氧化成 Ag^+ 并产生聚集,阴极附近也产生了离子的还原现象。在通电 12 s 时,已经可以观察到离子从阳极到阴极的迁移轨迹。只是由于通电电压较低,电解池内部虽然已经产生离子迁移,但是迁移信号并不强。这说明在电解电压比较低时,离子迁移和团聚信号弱到一个临界值,传统时间减影成像很难观测到该信号时,运动衬度成像方法可对电化学反应中的离子迁移以及元素浓度演化信号进行高灵敏、高衬度的原位、动态分析,有更广泛的应用范围。

6 总结与展望

活体小动物的血管造影、植物根茎的水质输运,以及电解反应中的离子迁移均是复杂体系的典型代表,运动衬度成像方法对上述体系中微弱信号的成功成像则可说明该方法在提高成像灵敏度和信噪比方面与传统直接成像方式相比具有显著的优势。此外,运动衬度成像对于复杂体系弱信号成像的高灵敏度可望在遥感成像领域^[61]发挥重要作用。但该方法目前仍在改进、优化中,并尝试将其用于不同领域、不同特点的复杂体系中。目前时频分析仍是运动衬度成像方法中数据处理的主要方式,时频分析

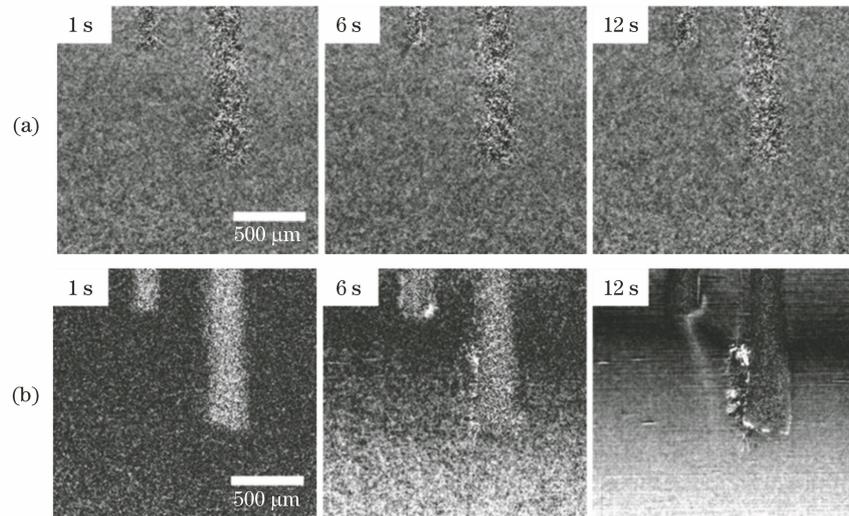


图 10 0.5 V 电压通电后电解池的化学反应过程。(a)传统动态时间减影成像分别获得 1,6,12 s 的关键帧;

(b)运动衬度成像重构的 1,6,12 s 的关键帧

Fig. 10 Dynamic processes of electrochemical reaction after electrolytic cell is switched on at voltage of 0.5 V.

(a) Keyframes of 1, 6, and 12 s obtained by traditional temporal subtraction imaging; (b) keyframes of 1, 6, and

12 s obtained by move contrast imaging

具有较强的可解释性,但其固定的数学级数变换形式又反过来限制了该方法对物质运动时变特性提取的能力。因此,结合多种形式的数学变换手段以及深度学习等模式识别技术,发展自适应的时变运动特征提取方法将是运动衬度成像下一步发展的方向之一。另一方面,目前运动衬度成像方法主要集中在成像体系的时域数据处理之上,但物质运动不仅具有时域属性,还具有丰富的空域特征,因此时空融合的运动衬度成像方法也是未来发展的主要趋势。随着上述问题的解决和技术的发展,运动衬度成像有望在更多领域发挥出更大的作用。本文介绍的应用实例主要以 X 射线成像为主,运动衬度成像方法适用于任意波长,可望在红外和可见光等其他波段获得广泛应用。

参 考 文 献

- [1] 姜真. 基于蛙眼视觉特性的运动目标检测与跟踪方法研究[D]. 长沙: 湖南大学, 2013: 8-14.
Jiang Z. The research on methods of moving target detection and tracking based-on frog vision characteristics [D]. Changsha: Hunan University, 2013: 8-14.
- [2] Wang X H, Li D Y, Zhang G. Panoramic stereo imaging of a bionic compound-eye based on binocular vision[J]. Sensors, 2021, 21(6): 1944.
- [3] Fu H W, Li D G, Zhang X Y. Research on moving object detection based on frog's eyes[J]. Proceedings of SPIE, 2009, 7156: 715613.
- [4] 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.
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.
- [5] Xie H L, Deng B, Du G H, et al. Latest advances of X-ray imaging and biomedical applications beamline at SSRF[J]. Nuclear Science and Techniques, 2015, 26(2): 10-25.
- [6] Xu L, Chen R C, Du G H, et al. Anisotropic shrinkage of insect air sacs revealed *in vivo* by X-ray microtomography[J]. Scientific Reports, 2016, 6: 32380.
- [7] Wang F X, Wang Y D, Wei G X, et al. Speckle-tracking X-ray phase-contrast imaging for samples with obvious edge-enhancement effect [J]. Applied Physics Letters, 2017, 111(17): 174101.
- [8] Yang Y M, Xu L, Wang Y D, et al. Non-destructive identification of unknown minor phases in polycrystalline bulk alloys using three-dimensional X-ray diffraction[J]. Materials Characterization, 2017, 124: 206-214.
- [9] Hu T, Hua W Q, Zhong G J, et al. Nondestructive and quantitative characterization of bulk injection-molded polylactide using SAXS microtomography [J]. Macromolecules, 2020, 53(15): 6498-6509.
- [10] Li K, Gao Y T, Zhang H P, et al. Efficient three-dimensional characterization of C/C composite

- reinforced with densely distributed fibers via X-ray phase-contrast microtomography[J]. Chinese Optics Letters, 2021, 19(7): 073401.
- [11] 许明伟, 薛艳玲, 陈荣昌, 等. 基于相位衬度成像的X射线生物特征识别仪[J]. 核技术, 2021, 44(8): 29-38.
- Xu M W, Xue Y L, Chen R C, et al. A biometrics recognition instrument using X-ray phase contrast imaging for biosafety inspection [J]. Nuclear Techniques, 2021, 44(8): 29-38.
- [12] Yu F C, Li K, Wang F X, et al. Double-exposure method for speckle-tracking X-ray phase-contrast microtomography[J]. Journal of Applied Physics, 2021, 129(7): 073101.
- [13] Artyukov I A, Irtuganov N N. Noise-driven anisotropic diffusion filtering for X-ray low contrast imaging [J]. Journal of Russian Laser Research, 2019, 40(2): 150-154.
- [14] Hu F H, Zeng C, Long R, et al. Supermultiplexed optical imaging and barcoding with engineered polyyenes[J]. Nature Methods, 2018, 15(3): 194-200.
- [15] Promdet P, Rodríguez-García B, Henry A, et al. Multimodal Prussian blue analogs as contrast agents for X-ray computed tomography [J]. Dalton Transactions, 2018, 47(34): 11960-11967.
- [16] Ju X L, Deng B, Li K, et al. Calibrating the linearity between grayscale and element content for X-ray KES imaging of alloys [J]. Nuclear Science and Techniques, 2022, 33(1): 1-12.
- [17] Yu F C, Wang F X, Li K, et al. Real-time X-ray imaging of mouse cerebral microvessels *in vivo* using a pixel temporal averaging method [J]. Journal of Synchrotron Radiation, 2022, 29(1): 239-246.
- [18] Wang F X, Zhou P T, Li K, et al. Sensitive imaging of intact microvessels *in vivo* with synchrotron radiation[J]. IUCrJ, 2020, 7(Pt 5): 793-802.
- [19] 王飞翔. X射线时空一阶光子关联成像研究[D]. 上海: 中国科学院上海应用物理研究所, 2019: 48-70.
- Wang F X. Spatial and temporal first order photon correlation X-ray imaging [D]. Shanghai: Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, 2019: 48-70.
- [20] 李可. 低Z材料复杂体系X射线成像及其应用研究[D]. 上海: 中国科学院上海应用物理研究所, 2021: 37-57.
- Li K. X-ray imaging to complex systems and its application in low-Z materials [D]. Shanghai: Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, 2021: 37-57.
- [21] Sevick E M, Lakowicz J R, Szmajnski H, et al. Frequency domain imaging of absorbers obscured by scattering [J]. Journal of Photochemistry and Photobiology B: Biology, 1992, 16(2): 169-185.
- [22] Desilles J P, Loyau S, Syvannarath V, et al. Alteplase reduces downstream microvascular thrombosis and improves the benefit of large artery recanalization in stroke [J]. Stroke, 2015, 46(11): 3241-3248.
- [23] Li X, Wu M L, Wang J H, et al. Ultrasmall bimodal nanomolecules enhanced tumor angiogenesis contrast with endothelial cell targeting and molecular pharmacokinetics [J]. Nanomedicine: Nanotechnology, Biology and Medicine, 2019, 15(1): 252-263.
- [24] Saji N, Toba K, Sakurai T. Cerebral small vessel disease and arterial stiffness: tsunami effect in the brain? [J]. Pulse, 2016, 3(3/4): 182-189.
- [25] Zhou P T, Wang L P, Qu M J, et al. Di-3-N-butylphthalide promotes angiogenesis and upregulates sonic hedgehog expression after cerebral ischemia in rats[J]. CNS Neuroscience & Therapeutics, 2019, 25(6): 748-758.
- [26] Zhang H, Tan H, Mao W J, et al. 18F-PBR06 PET/CT imaging of inflammation and differentiation of lung cancer in mice [J]. Nuclear Science and Techniques, 2019, 30(5): 122-129.
- [27] Longo R. Current studies and future perspectives of synchrotron radiation imaging trials in human patients [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2016, 809: 13-22.
- [28] Thomlinson W, Elleaume H, Porra L, et al. K-edge subtraction synchrotron X-ray imaging in bio-medical research [J]. Physica Medica, 2018, 49: 58-76.
- [29] Sánchez-Borges M, Aberer W, Brockow K, et al. Controversies in drug allergy: radiographic contrast media [J]. The Journal of Allergy and Clinical Immunology: in Practice, 2019, 7(1): 61-65.
- [30] 刘婷, 陈晓霞, 赵经纬, 等. 液态金属镓在活体兔肝动脉血管造影应用中的实验研究 [J]. 临床放射学杂志, 2021, 40(7): 1417-1422.
- Liu T, Chen X X, Zhao J W, et al. Experimental study of liquid metal gallium in live rabbit hepatic artery angiography [J]. Journal of Clinical Radiology, 2021, 40(7): 1417-1422.
- [31] Chien C C, Wang C H, Wang C L, et al. Synchrotron microangiography studies of angiogenesis in mice with microemulsions and gold nanoparticles [J]. Analytical and Bioanalytical Chemistry, 2010, 397(6): 2109-2116.

- [32] Chien C C, Kempson I M, Wang C L, et al. Complete microscale profiling of tumor microangiogenesis: a microradiological methodology reveals fundamental aspects of tumor angiogenesis and yields an array of quantitative parameters for its characterization[J]. *Biotechnology Advances*, 2013, 31(3): 396-401.
- [33] Wang J X, Lin X J, Mu Z H, et al. Rapamycin increases collateral circulation in rodent brain after focal ischemia as detected by multiple modality dynamic imaging[J]. *Theranostics*, 2019, 9(17): 4923-4934.
- [34] Sakamoto H, Matsushita S, Hyodo K, et al. A new technique of *in vivo* synchrotron radiation coronary microangiography in the rat[J]. *Acta Radiologica*, 2015, 56(9): 1105-1107.
- [35] Brodribb T J. Xylem hydraulic physiology: the functional backbone of terrestrial plant productivity[J]. *Plant Science*, 2009, 177(4): 245-251.
- [36] Tyree M T, Salleo S, Nardini A, et al. Refilling of embolized vessels in young stems of laurel. Do we need a new paradigm?[J]. *Plant Physiology*, 1999, 120(1): 11-22.
- [37] Nardini A, Lo Gullo M A, Salleo S. Refilling embolized xylem conduits: is it a matter of phloem unloading?[J]. *Plant Science*, 2011, 180(4): 604-611.
- [38] Lewis A M, Harnden V D, Tyree M T. Collapse of water-stress emboli in the tracheids of *Thuja occidentalis* L[J]. *Plant Physiology*, 1994, 106(4): 1639-1646.
- [39] Trifilò P, Kiorapostolou N, Petruzzellis F, et al. Hydraulic recovery from xylem embolism in excised branches of twelve woody species: relationships with parenchyma cells and non-structural carbohydrates[J]. *Plant Physiology and Biochemistry*, 2019, 139: 513-520.
- [40] Zwieniecki M A, Melcher P J, Ahrens E T. Analysis of spatial and temporal dynamics of xylem refilling in *Acer rubrum* L. using magnetic resonance imaging[J]. *Frontiers in Plant Science*, 2013, 4: 265.
- [41] Rolland V, Bergstrom D M, Lenné T, et al. Easy come, easy go: capillary forces enable rapid refilling of embolized primary xylem vessels[J]. *Plant Physiology*, 2015, 168(4): 1636-1647.
- [42] Warren J M, Bilheux H, Kang M S, et al. Neutron imaging reveals internal plant water dynamics[J]. *Plant and Soil*, 2013, 366(1/2): 683-693.
- [43] Brodersen C R, McElrone A J, Choat B, et al. *In vivo* visualizations of drought-induced embolism spread in *Vitis vinifera*[J]. *Plant Physiology*, 2013, 161(4): 1820-1829.
- [44] 李雷, 谭川东, 廖明娟, 等. 基于 Radon 逆变换的相对平行直线扫描 CT 解析重建[J]. *光学学报*, 2021, 41(6): 0611003.
- Li L, Tan C D, Liao M J, et al. Analytic reconstruction for parallel translational computed tomography based on radon inverse transform[J]. *Acta Optica Sinica*, 2021, 41(6): 0611003.
- [45] Karunakaran C, Lahlali R, Zhu N, et al. Factors influencing real time internal structural visualization and dynamic process monitoring in plants using synchrotron-based phase contrast X-ray imaging[J]. *Scientific Reports*, 2015, 5: 12119.
- [46] Bouda M, Windt C W, McElrone A J, et al. *In vivo* pressure gradient heterogeneity increases flow contribution of small diameter vessels in grapevine[J]. *Nature Communications*, 2019, 10: 5645.
- [47] Chen R C, Dreossi D, Mancini L, et al. PITRE: software for phase-sensitive X-ray image processing and tomography reconstruction[J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2012, 19(5): 836-845.
- [48] Sheng W C, Gasteiger H A, Shao-Horn Y. Hydrogen oxidation and evolution reaction kinetics on platinum: acid vs alkaline electrolytes[J]. *Journal of the Electrochemical Society*, 2010, 157(11): B1529.
- [49] Duan X L, Gao Z Y, Chang J L, et al. CoS₂-graphene composite as efficient catalytic counter electrode for dye-sensitized solar cell[J]. *Electrochimica Acta*, 2013, 114: 173-179.
- [50] Tanim T R, Rahn C D, Wang C Y. A temperature dependent, single particle, lithium ion cell model including electrolyte diffusion[J]. *Journal of Dynamic Systems, Measurement, and Control*, 2015, 137(1): 011005.
- [51] Ebbesen S D, Mojet B L, Lefferts L. *In situ* attenuated total reflection infrared (ATR-IR) study of the adsorption of NO₂⁻, NH₂OH, and NH₄⁺ on Pd/Al₂O₃ and Pt/Al₂O₃[J]. *Langmuir*, 2008, 24(3): 869-879.
- [52] Ramesha G K, Sampath S. Electrochemical reduction of oriented graphene oxide films: an *in situ* Raman spectroelectrochemical study[J]. *The Journal of Physical Chemistry C*, 2009, 113(19): 7985-7989.
- [53] Endres F, Borisenko N, El Abedin S Z, et al. The interface ionic liquid(s)/electrode(s): *in situ* STM and AFM measurements[J]. *Faraday Discussions*, 2012, 154: 221-233.
- [54] Zeng Z Y, Liang W I, Liao H G, et al. Visualization of electrode-electrolyte interfaces in LiPF₆/EC/DEC electrolyte for lithium ion batteries via *in situ* TEM[J]. *Nano Letters*, 2014, 14(4): 1745-1750.

- [55] Liu X S, Wang D D, Liu G, et al. Distinct charge dynamics in battery electrodes revealed by *in situ* and operando soft X-ray spectroscopy [J]. *Nature Communications*, 2013, 4: 2568.
- [56] 王纪华, 刘晓丽, 高龙, 等. X射线荧光光谱法测定镍电解液中的镍、氯、硫酸根[J]. *冶金分析*, 2012, 32(12): 29-33.
Wang J H, Liu X L, Gao L, et al. Determination of nickel, chlorine, sulfate in nickel electrolyte by X-ray fluorescence spectrometry [J]. *Metallurgical Analysis*, 2012, 32(12): 29-33.
- [57] Wagner M R, Albering J H, Moeller K C, et al. XRD evidence for the electrochemical formation of $\text{Li}^+(\text{PC})_y\text{C}_n^-$ in PC-based electrolytes [J]. *Electrochemistry Communications*, 2005, 7(9): 947-952.
- [58] 鞠晓璐, 李可, 余福成, 等. 电解池电化学反应过程的运动衬度 X 射线成像研究 [EB/OL]. (2022-04-13) [2022-04-18]. <https://wulixb. iphy. ac. cn/cn/article/doi/10.7498/aps.71.20220339>.
Ju X L, Li K, Yu F C, et al. Move contrast X-ray imaging of electrochemical reaction processes in electrolytic cell [EB/OL]. (2022-04-13) [2022-04-18]. <https://wulixb. iphy. ac. cn/cn/article/doi/10.7498/aps.71.20220339>.
- [59] Xie H L, Deng B, Du G H, et al. Methodology development and application of X-ray imaging beamline at SSRF [J]. *Nuclear Science and Techniques*, 2020, 31(10): 74-94.
- [60] Song X M, Pogue B W, Jiang S D, et al. Automated region detection based on the contrast-to-noise ratio in near-infrared tomography[J]. *Applied Optics*, 2004, 43(5): 1053-1062.
- [61] 尚华哲, 胡斯勒图, 李明, 等. 基于被动遥感卫星可见至红外通道观测的云特性遥感[J]. *光学学报*, 2022, 42(6): 0600003.
Shang H Z, Husi L T, Li M, et al. Remote sensing of cloud properties based on visible-to-infrared channel observation from passive remote sensing satellites [J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(6): 0600003.