

基于单毛细管椭球镜的微束 X 射线荧光成像

陶芬^{1,2}, 丰丙刚¹, 邓彪^{1,2*}, 孙天希³, 杜国浩^{1,2}, 谢红兰^{1,2}, 肖体乔^{1,2}

1. 中国科学院上海应用物理研究所, 上海 201800
2. 中国科学院上海高等研究院, 张江实验室上海光源科学中心, 上海 201210
3. 北京师范大学, 北京 100875

摘要 X射线荧光成像是一种可无损获得样品内部元素空间分布信息的实验技术,可分为荧光 mapping 扫描成像与荧光 CT 成像,其空间分辨率由 X 射线聚焦束斑的大小决定。上海光源成像线站已建立 X 射线荧光成像系统并对用户开放,在多个领域取得较好的研究成果,该系统基于狭缝限束获取微束 X 射线,束斑为 150 μm ,限制了该方法的广泛应用。椭球聚焦镜是反射面为椭球面的单次反射单毛细管光学元件,基于全反射原理,具有反射效率高、工作距离长、接收角宽、适用 X 射线能量范围宽、体积小等优点,已应用到 X 射线聚焦、全场纳米成像等领域。由于对面型精度的要求较高,制备椭球聚焦镜难度较大。为满足广大用户对微束荧光成像的需求,自行设计并成功研制了针对微束荧光成像系统的单毛细管椭球镜,并对其进行了 X 射线聚焦性能检测,结果显示可获得 14 μm 聚焦光斑,焦点处增益可达 255 倍。基于自主研制的椭球镜,在上海光源 BL13W 搭建微束 X 射线荧光成像系统,并开展了微束荧光 mapping 成像与微束荧光 CT 实验研究:(1)对中风鼠脑切片的荧光 mapping 扫描成像,得到中风鼠脑中微量元素铜、铁、钙与锌的元素分布荧光光谱图;(2)对鼠脑及毛细管中浓度为 0.5 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的标准砷溶液进行同步辐射微束 X 射线荧光 CT 成像,利用 OSEM 重构算法重构投影数据,获得了鼠脑中铜元素和毛细管中砷元素二维分布的切片图。两组实验表明,基于自行设计与研制的单毛细管椭球镜的微束 X 射线荧光成像系统,样品处的光通量密度增加,空间分辨率得到提高,单张荧光光谱的获取时间显著减少,同时也提高了系统的元素探测限。

关键词 单毛细管椭球镜; 荧光成像; 元素分布; 同步辐射

中图分类号: O433.4 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2020)07-2011-05

引言

微束 X 射线荧光成像是一种具有高空间分辨率、高灵敏度、可无损分析样品内部元素空间分布的研究方法,分为荧光扫描成像(X-ray fluorescence mapping)与微束荧光 CT(microbeam X-ray fluorescence computed tomography, $\mu\text{-XF-CT}$),微束 X 射线荧光成像广泛应用到材料、生物、医学等诸多领域^[1-2],它已经作为研究样品元素分布的重要手段之一。

上海光源 BL13W 线站已于 2011 年建立了 X 射线荧光成像系统并对用户开放^[3-4],该系统基于狭缝限束方法获得微束 X 射线。由于没有聚焦元件,该荧光成像系统探测限较低,其空间分辨为 150 μm ,大量用户提出了开展微束聚焦荧

光成像的需求。

首先介绍针对上海光源 BL13W 线站的荧光成像的椭球镜参数设计;再对研制的椭球镜聚焦光进行性能评估;基于研制的椭球镜搭建了微束 X 射线荧光成像系统,并对中风鼠脑进行二维荧光扫描成像,及鼠脑和标准砷溶液的荧光 CT 成像,获得了其中的微量元素的空间分布。

1 椭球聚焦镜设计与检测

椭球聚焦镜是反射面为椭球的单次反射单毛细管,为全反射元件,反射面为椭球面。光源点位于椭球的一个焦点上,聚焦光斑位于另一个焦点上,X 射线经过毛细管单次反射后聚焦在样品上,可提高样品点处光通量密度^[5-7],其具有反射效率高、工作距离长、接收角宽、适用 X 射线能量范

收稿日期: 2019-06-21, 修订日期: 2019-10-12

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFA0206004), 国家自然科学基金项目(11775297)资助

作者简介: 陶芬,女,1994年生,中国科学院上海高等研究院张江实验室上海光源科学中心研究实习员 e-mail: taofen@sinap.ac.cn

* 通讯联系人 e-mail: dengbiao@sinap.ac.cn

围宽、体积小等优点。

1.1 物理参数设计

椭球镜是内表面为椭球面的单毛细管，其光学示意图如图 1 所示。

针对上海光源成像线站(BL13W)的光斑参数^[8]设计用

于荧光成像的椭球物理参数。图 1 是椭球镜的聚焦原理图。光源点位于椭圆的一个焦点 F (当椭球的长半轴 $a \gg b$ 时, 焦点靠近顶点)处, 照射到椭球镜内表面发生全反射, 将光源成像在椭球镜的另一个焦点 F' (样品)处, 从而达到聚焦的效果^[9]。

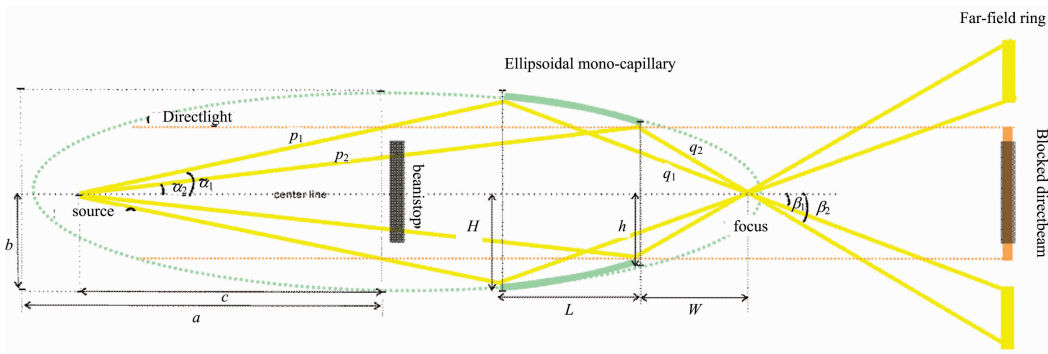


图 1 椭球镜的聚焦原理示意图

Fig.1 Schematic illustration of ellipsoidal capillary focusing principle

上海光源 X 射线成像线站为插入件扭摆器光源, 光源点到样品的距离为 34 m。设计出椭球镜物理参数如表 1。

表 1 椭球镜物理参数

Table 1 Parameters of ellipsoidal capillary

Parameters of ellipsoidal capillary	value
X-ray energy E/keV	12
Entry radius H/mm	1.1
Exit radius h/mm	0.7
Working distance W/mm	16
Length L/mm	40
Semi major axis a/mm	17 000
Semi minor axis b/mm	13.56

根据设计的物理参数成功拉制出符合设计要求的椭球镜, 研制的椭球镜实物图如图 2^[10]。

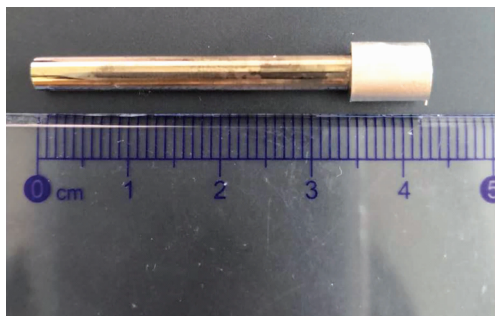


图 2 椭球镜的照片

Fig. 2 The picture of ellipsoidal capillary

1.2 椭球镜检测

X 射线荧光成像中, 椭球镜的聚焦光斑大小决定了其分辨率, 椭球镜焦深决定了样品的厚度, 焦距决定了样品到椭球镜的距离, 为此对于椭球的检测包括近场的焦点光斑大

小、焦距、焦深等参数。

为实现椭球镜的同步辐射 X 射线检测, 在上海光源成像线站搭建了椭球镜的测试系统, 选择能量 12 keV 下进行检测。将椭球镜放置在六维高精度旋转台, 通过调节其旋转角以及俯仰角 2 个维度方向得到均匀的聚焦光斑, 椭球镜前端安装 beamstop 用于遮挡椭球镜中间的直通光, 椭球镜的后方放置高分辨探测器用于检测其聚焦光斑, 探测器单像素为

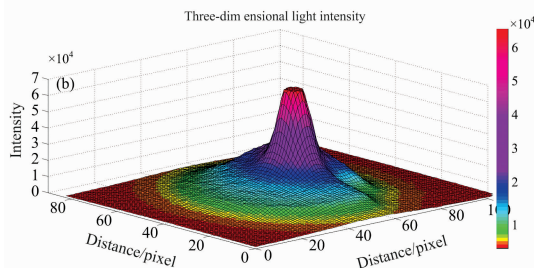
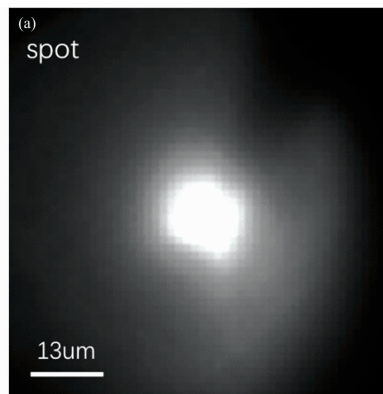


图 3 椭球镜焦点光斑图

(a): 聚焦光斑图; (b): 其三维度强度分布图

Fig. 3 The picture of capillary at the focus

(a): The shape of focused spot; (b): Three-dimensional light intensity profiles of focused spot

6.5 μm · pixel⁻¹，使用光学系统 10 倍放大后等效单像素尺寸为 0.65 μm · pixel⁻¹。

在距离椭球镜出口 15 mm 处得到最小最亮的光斑(曝光时间 50 ms)，同时测得焦距为 1.5 mm，焦斑的半高全宽(full width at half maximum, FWHM)为 14 μm，光通量密度增益达 255 倍(相同条件下，同一位置聚焦光斑灰度值与直通光下的灰度值)，如图 3(a)和(b)所示。

椭球镜性能测量结果如表 2 所示。

表 2 椭球镜聚焦性能测量结果

Table 2 The measurement parameter of focal spot

Focal spot size/μm	Focal depth/mm	Working distance/mm	Intensity gain
14	1.5	15	255

2 基于椭球镜的微束 X 射线荧光成像

在上海光源 BL13W 搭建的 X 射线荧光成像实验装置图如图 4 所示。通过椭球镜将同步辐射光聚焦成微束，照射到样品处，提高样品处的光通量，样品放置在距离椭球镜出口 15 mm 处，并在与光路成 45°方向进行扫描使样品上点到探测器的距离相同，再通过与光路成 90°方向上放置荧光探测器(SDD, SII, Vortex-90E)来收集其荧光光谱。沿着光路方向的高分辨探测器(6.5 μm · pixel⁻¹)用来检测样品的透射成像，观察样品是否处于光路中。

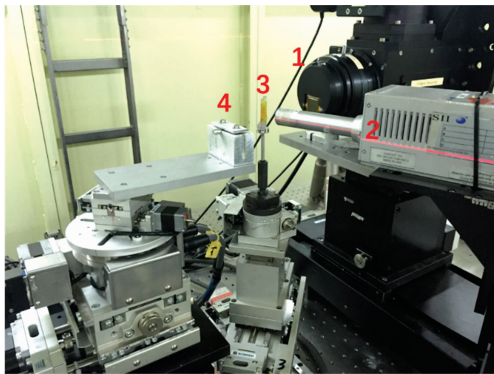


图 4 微束 X 射线荧光成像实验装置图

- 1: 高分辨探测器; 2: 硅漂移荧光探测器;
- 3: 样品; 4: 单毛细管椭球镜

Fig. 4 The picture of microbeam X-ray fluorescence imaging experimental setup

- 1: The detector; 2: Silicon drift detector (SDD);
- 3: High-precision sample stage; 4: Ellipsoidal capillary

2.1 二维荧光 mapping 扫描成像

X 射线能量为 12 keV，选用中风鼠脑切片作为测试样品，由于其中的元素含量较低，在无聚焦镜情况下，荧光扫描无法有效获得元素荧光光谱。将椭球聚焦镜加入光路中，中风鼠脑切片作为样品固定在 Capton 膜上，放置在距离椭球镜出口 15 mm 的焦点处，样品扫描移动方向与入射 X 射

线成 45°夹角，扫描步进为 50 μm，使用荧光探测器(SDD)采集荧光光谱，单张采集时间为 1 s。

得到结果如图 5 所示。实验得到中风鼠脑中的四种元素的荧光光谱图，图中分别表示鼠脑切片中铜、铁、钙与锌的元素分布。从实验结果可以看出中风鼠脑中每种微量元素分布是不一样的：Fe 与 Zn 的分布较为均匀；Cu 分布较为不均匀，在图片左半部分分布较为集中；Ca 的分布不均匀，其主要分布在图片的下半部分。

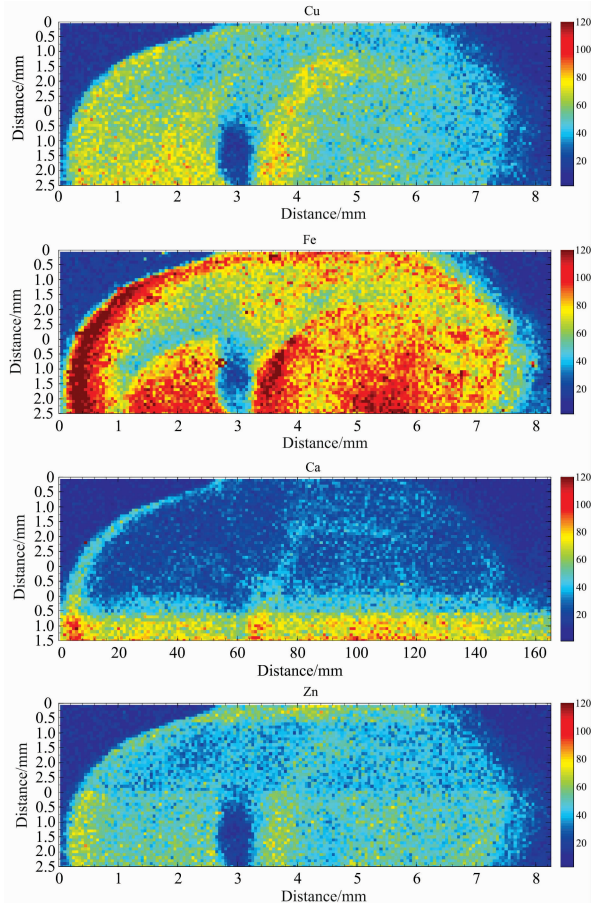


图 5 中风鼠脑切片中的微量元素分布图

Fig. 5 Trace element distribution map of stroke rat brain slice

光路中添加了椭球聚焦镜后，不仅可以检测到样品中微量元素，而且可以清晰地观察到其分布情况。该实验结果初步表明了，基于椭球聚焦镜的同步辐射荧光扫描成像可以检测出样品中微量元素的荧光光谱图，实现了高灵敏度、高分辨率的成像。

2.2 荧光 CT 成像

采用浓度为 0.5 mg · L⁻¹ 砷标准溶液与鼠脑块分别作为实验样品，进行基于椭球镜的同步辐射荧光 CT 实验^[11]。实验 X 射线能量为 20 keV，将样品放置在椭球镜出口 15 mm 焦距处的样品台上。砷标准溶液样品的 CT 扫描步长为 20 μm，鼠脑样品的 CT 扫描步长为 30 μm，使用荧光探测器获取荧光光谱，单点测量时间为 0.8 s。样品每隔 6°旋转一次获得一张单张荧光光谱，共旋转 60 次，总共采集 60 张投影图片。

由于荧光采集所需时间长,实验为了节约时间,只做了样品的一个切片结果。将得到的结果使用 OSEM 算法进行数据重构^[12]。得到重构的样品荧光 CT 切片图如图 6 所示。图中 (a) 图为 $0.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 砷溶液重构出的荧光 CT, 从图中可以看出砷元素的分布状况; 图中 (b) 图为鼠脑切片中铜元素的荧光 CT 切片图, 由图片可以看出鼠脑的铜元素的分布。

实验结果表明, 基于椭球镜的同步辐射荧光 CT 实现了

对砷溶液、鼠脑块铜元素分布的重建。在未使用聚焦镜的实验中光斑通过卡狭缝只能达到 $150 \mu\text{m} \times 500 \mu\text{m}$ (宽 \times 高), 单张荧光谱获取时间为 3 s, 而使用了聚焦镜之后, 光斑大小为 $14 \mu\text{m}$ (FWHM), 其空间分辨率提高了, 同时单张荧光谱获取时间也缩短到 0.8 s。对比可知椭球聚焦镜的使用提高了其空间分辨率, 减少了曝光时间。

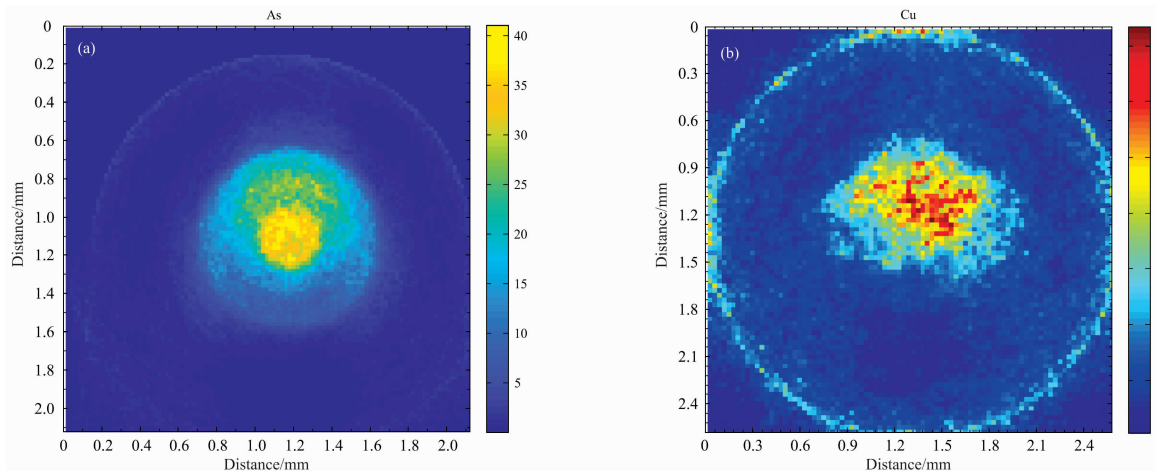


图 6 样品的荧光 CT 切片图

(a): $0.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 砷溶液切片图; (b): 鼠脑块 Cu 元素切片图

Fig. 6 Fluorescence CT slice of the sample

(a): $0.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ arsenic solution slice diagram; (b): Cu element slice in rat brain

3 总结与展望

基于自主研制的椭球聚焦镜, 搭建了同步辐射微束 X 射线荧光成像系统, 提高了样品处光通量密度、成像的空间分辨率、灵敏度以及元素探测限。通过二维荧光 mapping 扫描成像, 得到鼠脑切片中的微量元素的分布图。通过微束荧光

CT 成像, 基于 OSEM 算法与较少的投影图, 重构得到了标准砷溶液及鼠脑中砷与铜元素分布的切片图。接下来, 将通过优化实验条件, 提高实验效率, 以期得到完整的三维元素分布图像。

同时单毛细管椭球聚焦镜还可以应用到透射 X 射线显微镜中。设计专门的椭球镜, 利用其聚焦环形与波带片匹配, 可实现纳米级的高空间分辨成像。

References

- [1] Liu Yijin, Florian Meirer, Courtney M Krest, et al. Nature Communications, 2016, 7: 12634.
- [2] Rocha H S, Pereira G R, Anjos M J, et al. X-Ray Spectrometry, 2010, 36(4): 247.
- [3] Deng B, Du G, Zhou G, et al. Analyst, 2015, 140(10): 3521.
- [4] Feng B G, Tao F, Yang Y M, et al. Nuclear Science and Techniques, 2018, 29(6): 85.
- [5] Zeng X, Duewer F, Feser M, et al. Appl. Opt., 2008, 47(13): 2376.
- [6] Zhang Xiaoyun, Wang Yabing, Li Yufei, et al. Applied Optics, 2019, 58(5): 1291.
- [7] Wang Yabing, Zhang Xiaoyun, Li Yufei, et al. Nuclear Inst. & Methods in Physics Research, A, 2019, 934: 36.
- [8] XIAO Ti-qiao, XIE Hong-lan, DENG Biao, et al (肖体乔, 谢红兰, 邓彪, 等). Acta Optica Sinica(光学学报), 2014, 34(1): 0100001.
- [9] TAO Fen, WANG Yu-dan, REN Yu-qi, et al (陶芬, 王玉丹, 任玉琦, 等). Acta Optica Sinica(光学学报), 2017, (10): 1034002.
- [10] Sun X, Liu Z, Sun T, et al. Nuclear Instruments & Methods in Physics Research, 2015, 802: 5.
- [11] Deng Biao, Yang Qun, Xie Honglan, et al. Chinese Physics C, 2011, 35(4): 402.
- [12] Hu Tao, Wang Yudan, Du Guohao, et al. Applied Optics, 2017, 56(30): 8326.

Micro X-Ray Fluorescence Imaging Based on Ellipsoidal Single-Bounce Mono-Capillary

TAO Fen^{1, 2}, FENG Bing-gang¹, DENG Biao^{1, 2*}, SUN Tian-xi³, DU Guo-hao^{1, 2}, XIE Hong-lan^{1, 2}, XIAO Ti-qiao^{1, 2}

1. Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China

2. Shanghai Advanced Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Shanghai Synchrotron Radiation Facility, Zhangjiang Laboratory (SSRF, ZJLab), Shanghai 201210, China

3. Beijing Normal University, Beijing 100875, China

Abstract Micro X-ray fluorescence (μ XRF) imaging is powerful non-destructive technique for imaging distributions of nonradioactive elements within the body, including scanning X-ray fluorescence and X-ray fluorescence computed tomography. The spatial resolution is determined by the size of the X-ray focused beam spot. The μ XRF instrumentation, which uses a simple pinhole aperture to restrict the incident beam size on the sample surface, has been established and opened to users at SSRF X-ray imaging beamline (BL13W). It has a typical spatial resolution ranging in diameter from 200 micrometers up to several millimeters. Ellipsoidal shaped single-bounce glass capillaries have been used as achromatic X-ray focusing optics for various applications at synchrotron beamlines, which can provide efficient and high demagnification focusing with large numerical apertures, large Working distance, the wide energy range of x-rays, small volume and so on. The support a wide range of applications, including Micro X-ray fluorescence, full-field transmission X-ray microscopy (TXM), etc. But the challenge is to make an accurate profile with small slope errors. In order to meet the requirements of users for μ XRF imaging, the single bounce ellipsoidal glass mono-capillary was designed and fabricated and its performance was measured by an X-ray test. The focus spot and the gain of this mono-capillary were $14\mu\text{m}$ and 255 at 8 keV, respectively. The images of focal spot by detector showed that this fabricated mono-capillary had high quality and satisfied the requirement of the designed data for μ XRF. The μ XRF instrumentation has been established, based on ellipsoidal mono-capillary designed and fabricated by ourselves, and carried out scanning X-ray fluorescence and X-ray fluorescence computed tomography experimental research at SSRF X-ray imaging beamline (BL13W). Firstly, the fluorescence spectrum of the trace elements copper, iron, calcium and zinc in the stroke rat brain by scanning X-ray fluorescence. Secondly, the Arsenic of standard solution and the rat brain were subjected to microX-ray fluorescence computed tomography. Two-dimensional slices of Arsenic element in solution and copper element in the rat brain by OSEM algorithm to reconstructed. This study demonstrates that the μ XRF instrumentation is a powerful X-ray analytical microscope with the high resolution and high sensitivity μ XRF capabilities available.

Keywords Ellipsoidal single-bounce mono-capillary; X-ray fluorescence imaging; Distribution of element; Synchrotron radiation

(Received Jun. 21, 2019; accepted Oct. 12, 2019)

* Corresponding author