

20 Hz 高时空分辨 X 射线单色光动态 显微 CT 研究

仇正杰^{1,2,3} 李可² 谢红兰^{1,2} 杜国浩^{1,2} 邓彪^{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 上海同步辐射光源 上海 201204)

3(中国科学院大学 北京 100049)

摘要 与白光 X 射线动态显微 CT (Micro Computed Tomography) 相比, 单色光 X 射线动态显微 CT 具有较低的辐射损伤和较高的密度分辨率, 但是更难以平衡其空间和时间分辨率。目前, 单色光 X 射线动态显微 CT 的最高时间分辨率可达到 13.3 Hz, 探测器有效像素尺寸为 5 μm 。为了构建具有更高时空分辨率的单色光 X 射线动态显微 CT 系统, 基于上海光源快速 X 光成像线站 (BL16U2) 的高通量密度单色光, 将高速转台与三镜头大数值孔径快速 X 射线成像探测器相结合, 构建了实验系统。以速发型聚氨酯材料为研究对象进行了验证实验, 在 15 keV 单色光下动态显微 CT 的时间分辨率达到了 20 Hz, 探测器有效像素尺寸为 2.2 μm 。对气泡运动进行相关定量分析, 证明该系统具有高时空分辨率和高对比度分辨率, 可以对复杂运动系统进行四维时空定量分析, 为 BL16U2 线站用户进行高时空分辨率的复杂原位研究提供了强大的实验平台。

关键词 X 射线动态显微 CT, 快速 X 射线成像, X 射线单色光显微 CT, 同步辐射

中图分类号 TL54⁺4, TL99

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.070101

Study of 20 Hz high spatial-temporal resolution monochromatic X-ray dynamic micro-CT

QIU Zhengjie^{1,2,3} LI Ke² XIE Honglan^{1,2} DU Guohao^{1,2} DENG Biao^{1,2} XIAO Tiqiao^{1,2}

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

2(Shanghai Synchrotron Radiation Facility, Shanghai Advanced Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201204, China)

3(University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract [Background] Dynamic micro-computed tomography (micro-CT) using monochromatic X-ray offers higher density resolution and lower radiation damage compared to that using white X-ray, however balancing its imaging spatial and temporal resolution is challenging. Currently, the reported highest temporal resolution of monochromatic X-ray dynamic micro-CT is 13.3 Hz with a detector effective pixel size of 5 μm . [Purpose] This study aims to develop a monochromatic X-ray dynamic micro-CT system with a higher spatial and temporal resolution to meet the experimental needs of the fast X-ray imaging beamline (BL16U2) users at Shanghai Synchrotron Radiation Facility (SSRF). [Methods] Firstly, an experimental system of dynamic micro-CT with the high flux density monochromatic X-ray from an undulator source was established by combination of a high-speed rotary stage and a large numerical aperture triple-lens fast X-ray imaging detection system on the BL16U2 beamline

国家重大科研仪器研制项目(No.11627901)资助

第一作者: 仇正杰, 男, 1999年出生, 2020年毕业于南京信息工程大学, 现为硕士研究生, 研究领域为 X 射线成像

通信作者: 李可, E-mail: like@sari.ac.cn; 谢红兰, E-mail: xiehl@sari.ac.cn

收稿日期: 2023-02-12, 修回日期: 2023-04-10

Supported by National Major Scientific Instruments and Equipments Development Project of China (No.11627901)

First author: QIU Zhengjie, male, born in 1999, graduated from Nanjing University of Information Science and Technology in 2020, master student, focusing on X-ray imaging

Corresponding author: LI Ke, E-mail: like@sari.ac.cn; XIE Honglan, E-mail: xiehl@sari.ac.cn

Received date: 2023-02-12, revised date: 2023-04-10

at SSRF. Then, a demonstration experiment with a fast-foaming polyurethane material as a sample was performed to examine the spatial-temporal resolution of this experimental system, moreover a quantitative analysis of the bubble motion during foaming process was performed. **[Results]** Experimental results of foaming process of the fast-foaming polyurethane material based on the monochromatic X-ray dynamic micro-CT system show that a temporal resolution of 20 Hz of the dynamic micro-CT was achieved with 15 keV monochromatic X-ray and an effective detector pixel size of 2.2 μm . **[Conclusions]** The developed monochromatic X-ray dynamic micro-CT system has a high spatial-temporal resolution and can perform four-dimensional quantitative analysis of complex motion systems, providing a powerful experimental research platform for users of BL16U2 beamline at SSRF.

Key words X-ray dynamic Micro-CT, Fast X-ray imaging, Monochromatic X-ray Micro-CT, Synchrotron radiation

X射线动态显微CT (Micro Computed Tomography) 技术能够无损地获得研究对象内部三维结构的演化信息,是研究活体样本和开展原位实验的有力手段^[1-2],在材料科学、生物医学、地质科学等领域都有着广泛的应用,如利用X射线动态显微CT原位观测红外激光照射下聚丙烯和聚碳酸酯聚合物材料的熔化、鼓泡和灰化过程^[3],原位研究铝合金材料加载情况下的裂纹演化^[4],原位观测蠕虫内部呼吸道的剧烈运动^[5]等。为了提高动态显微CT的时间分辨率以实现实时观测更快的各种快过程,大部分的实验都采用X射线白光照射以提高光通量密度,例如本课题组基于上海光源BL09B线站弯铁白光实现了25 Hz(每秒钟采集25组CT数据)动态显微CT,实时观测了活体蚱蜢腿部的伸展过程^[6]。但白光照射带来的高辐射剂量对于活体生物样品的正常生理活动有着严重影响,限制了该方法在活体生物体系中的应用^[7]。同时,白光照射包含多波长的X射线,导致了样品的定量吸收或相位信息的丢失,限制了该方法对于复杂样品三维结构演化的定量研究^[8]。

为了解决X射线动态显微CT采用X射线白光照射带来的辐射剂量大和样品相位信息丢失的问题,实现对活体样品的长时间观测和复杂样品三维结构演化的定量研究,可以采用X射线单色光对样品进行照射成像。根据样品特性选择吸收系数较低的特定波长X射线,可以大大减少样品受到的辐射剂量。另一方面,单色光照射避免了白光照射中存在的色散问题,通过相位恢复可以有效地获得样品的相位信息,因此利用单色光照明进行相衬成像效果很好,并可以实现复杂样品三维结构演化的定量研究。随着高亮度同步辐射光源、高速CMOS (Complementary Metal-Oxide-Semiconductor) 成像探测器、高效闪烁体的迅猛发展为实现X射线单色光动态显微CT提供了条件^[6],使其能够有效应用于动态样品的原位研究中,如原位观察铝铜合金固化过程中显微结构随时间演化的三维空间分布^[9-10],原

位表征蛋白食品内部孔隙随时间衰减的四维结构动力学^[11]等。本课题组基于上海光源BL13W1线站采用14 keV X射线单色光实现了2 Hz时间分辨率和13 μm 空间分辨率(探测器有效像素尺寸6.5 μm)的单色光动态显微CT,首次观察到昆虫呼吸过程中气囊运动的各向异性^[12]。然而,由于单色化后的X射线在通量密度上比原来的白光低大约3个量级,在相同的实验条件下,要实现相同的成像空间分辨率,单张投影的曝光时间显著增加,大大降低了动态显微CT的时间分辨率。因此,在X射线单色光动态显微CT中,成像的空间分辨率和时间分辨率存在着制约关系,在实际研究中往往需要结合实验条件选择合适的参数平衡两者^[13],目前,最好的单色光动态CT实验是在日本Spring-8光源BL24XU线站开展的石蜡加热融化实验,在10 keV单色光条件下达到了13.3 Hz的时间分辨率和10 μm 的空间分辨率(探测器有效像素尺寸5 μm)^[14]。

上海光源快速X光成像线站(BL16U2)是上海光源二期工程的新建线站之一,可以提供多种时间分辨的快速X射线成像方法,包括百皮秒级X射线单脉冲成像、微秒级X射线二维动态成像以及毫秒级X射线三维动态显微CT。为了满足上海光源广大用户要求实现高时空分辨、高密度分辨地实时观测样品内部三维结构演化过程,开展相关实验研究的迫切需求,本文基于BL16U2线站波荡器光源的高通量密度的X射线单色光,结合高速转台系统和课题组自研的高效高分辨X射线快速成像探测系统,搭建了一套高时空分辨的X射线单色光动态显微CT系统,并以速发型聚氨酯发泡材料体系作为研究对象进行了验证性实验,在15 keV单色光条件下成功实现了20 Hz的时间分辨率(50 ms采集一套CT数据)和4 μm 空间分辨率(探测器有效像素尺寸2.2 μm),实验结果证明了该系统的高时间分辨能力、高空间分辨能力和高衬度分辨能力,并通过一系列定量分析结果体现了该系统对复杂运动体系进行四维时空定量分析的优越性,为上海光源快速X光

成像线站用户开展高时空分辨复杂原位研究提供了强大的实验研究平台。

1 基于BL16U2线站的实验系统搭建

1.1 实验系统构成

快速X光成像线站的光束线主要设备包括周期长度18 mm的液氮冷却低温波荡器光源(Cryogenic Permanent Magnet Undulator, CPMU)、白光狭缝、水

平偏转镜、液氮冷却双晶单色器、单色光狭缝、金刚石窗,其光学布局如图1(a)所示。光束线提供白光(粉光)模式和单色光模式,其光束高差为25 mm,样品处的光斑尺寸为 $2.5\text{ mm}\times 1.5\text{ mm}$ 。储存环束流强度200 mA时,样品位于距光源点38 m处,10 keV时的样品处光子通量密度为 $4.24\times 10^{13}\text{ s}^{-1}\cdot\text{mm}^{-2}$,表明该线站的单色光通量密度足够高,为实现高时间分辨的X射线单色光动态CT提供必要条件。

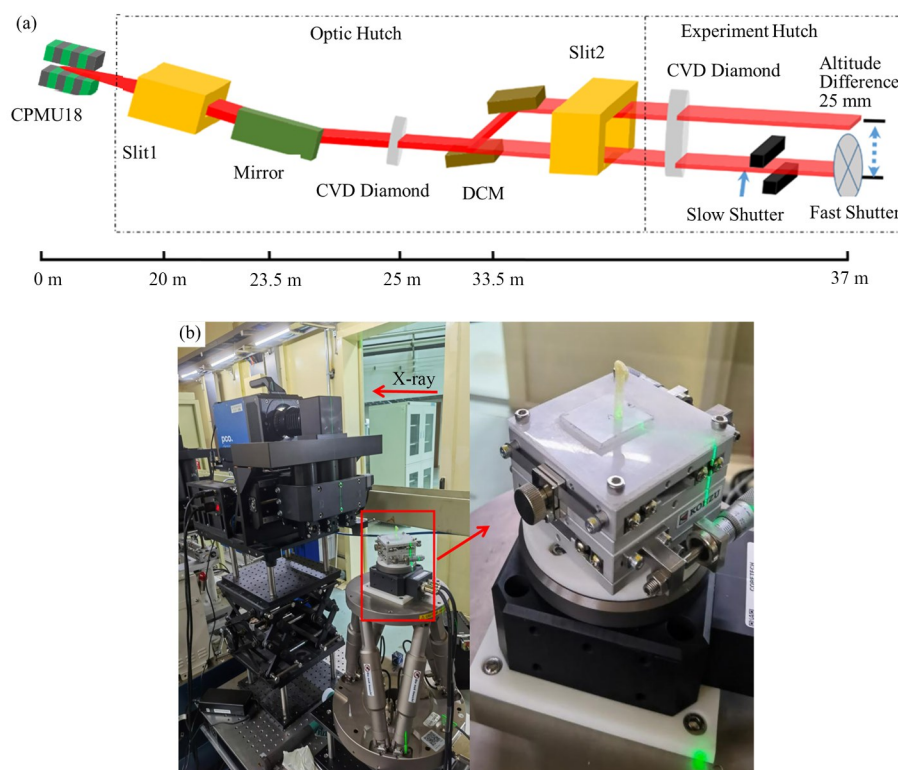


图1 快速成像线站实验装置
(a) 线站光束线布局, (b) X射线单色光动态显微CT实验装置

Fig.1 Experimental setup of BL16U2 beamline
(a) Layout of the beamline, (b) Experimental setup for monochromatic X-ray dynamic micro-CT

X射线单色光动态显微CT实验装置如图1(b)所示,主要分为高速转台系统以及快速X射线成像探测系统。转台底座为PI公司的H850六轴六足位移台,用于调整转台和样品的位置和姿态,重复精度 $0.2\text{ }\mu\text{m}$ 。高速转台采用了地心科技的RSML-100机械直驱转台,最高转速可达 $1\ 800\text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 。转台上方安装了一套Kohzu的YM07A-S1手动X、Y轴位移台,用于调整样品旋转轴心对中。成像探测系统是一套课题组自研的快速X射线成像探测器,由一套自研的大数值孔径三镜头光学转换系统和一台PCO Dimax HS4高速相机组合而成。采用自研的大数值孔径的透镜组显著提升了透镜组的耦合效率,进而显著提升成像探测器的时间分辨率。该光学转

换系统包括三种放大倍率的镜头组,分别为2倍($2\times$)、5倍($5\times$)、10倍($10\times$),其数值孔径分别为0.15、0.3、0.4,是目前商业标准镜头数值孔径的两倍,其耦合效率是商业镜头的4倍。每个镜头组前面都配备了LuAG:Ce闪烁晶体,三组镜头对应的闪烁晶体厚度分别为 $100\text{ }\mu\text{m}$ 、 $50\text{ }\mu\text{m}$ 、 $50\text{ }\mu\text{m}$ 。高速相机的像素尺寸为 $11\text{ }\mu\text{m}$,像素个数为 $2\ 000(H)\times 2\ 000(V)$,图像位深12 bit,全视场下最高帧率可达每秒2 277帧,在减小成像视场的情况下能够达到更高的拍摄帧率。因此,整套成像探测系统的有效像素尺寸在三种放大倍率下分别为 $5.5\text{ }\mu\text{m}$ 、 $2.2\text{ }\mu\text{m}$ 和 $1.1\text{ }\mu\text{m}$ 。

1.2 验证性实验参数

实验样品:单色光动态显微CT的实验样品选用速发型聚氨酯发泡材料,该材料主要分为黑料和白料两种液态组分,黑料的主要成分为异氰酸酯,白料的主要成分为聚醚多元醇,同时包含水、硬脂酸钙、辛酸亚锡等反应助剂。当黑料与白料混合时会发生剧烈反应,生成聚氨酯基体并释放二氧化碳,产生大量微米级别的气泡。实验中,先后将15 μL 的黑料和白料先后加入内径2 mm的管状聚甲基丙烯酸甲酯(Polymethylmethacrylate, PMMA)材质反应容器中,并充分搅拌以保证反应充分进行。

成像参数:储存环流强200 mA,调节插入件磁场间隙为10.2 mm,对应波荡器三次谐波的中心锥能量为15 keV,单色器也调节到15 keV。样品高速转台转速设置为600 $\text{r}\cdot\text{min}^{-1}$ (每秒10圈),每半圈采集一组CT,即每秒20组CT,时间分辨率为50 ms。探测器切换到5 \times 放大倍率,有效像素尺寸2.2 μm 。探测器到样品的距离为230 mm,在保证空间分辨率的同时提高相位衬度。高速相机的拍摄帧率设置为5 000 s^{-1} ,单张投影图的曝光时间为181 μs ,图像尺寸为1 200 \times 500像素,每组CT包含250张投影图。整个采集过程持续了1.1 s,共采集了22组CT数据共计5 500张投影图像,投影采集结束后采集了白场像和暗场像各5张,白场像为将样品移出视场后拍摄的光斑像,暗场像为没有X射线照射时的拍摄的像,用于后续重构过程中的图像背景校正。将采集到的投影图导入课题组自研PITRE软件进行相位恢复,再使用自研GPU加速并行重构软件进行CT重构,最后使用Thermo Fisher Scientific公司的Avizo软件进行后续的三维显示和数据定量分析,完整的流程如图2所示。

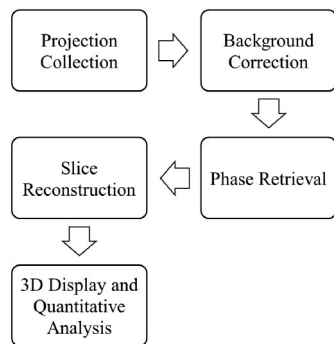


图2 验证性实验流程图
Fig.2 Flow chart of the verification experiment

2 相位恢复以及切片重构算法

根据X射线的复折射率公式: $n=1-\delta+i\beta$,其中,

δ 为折射指数, β 为吸收指数。对于15 keV的X射线,聚氨酯的 $\delta=1.01\times 10^{-6}$, $\beta=6.22\times 10^{-10}$,前者约是后者的1 600^[15],因此,相位衬度成像相对于吸收衬度成像对弱吸收样品具有更高的灵敏度。由于探测器只能记录强度信息,不能探测到相位信息,需要对每个角度的投影图进行相位恢复处理,本实验采用课题组自研软件PITRE^[16]中基于相移吸收二元性的Paganin^[17]单距相位恢复算法(Phase-Attenuation Duality Paganin Algorithm, PAD-PA)^[18]:

$$\varphi_{\theta}(x,y) = \frac{1}{2} \varepsilon \ln \left\{ F^{-1} \left[\frac{F(I_{\theta}(x,y,z))}{1 + \pi \varepsilon \lambda z (\zeta^2 + \eta^2)} \right] \right\} \quad (1)$$

式中: $\varphi_{\theta}(x,y)$ 为该投影对应的相位恢复图; $I_{\theta}(x,y,z)$ 为旋转角为 θ 、样品到探测器距离为 z 的投影图; ε 为 δ 与 β 的比值; λ 为X射线的波长。 (ζ, η) 则代表了实空间中点 (x,y) 对应的傅里叶空间中的空间频率。

将 $0^{\circ}\sim 180^{\circ}$ 的所有相位恢复图导入到课题组自研的基于GPU并行计算的快速重构软件进行CT重构,重构算法采用滤波反投影算法(Filtering back-projection algorithm)来获得三维折射指数分布 $\delta(x,y,z)$ ^[19],如下:

$$\delta(x,y,z) = \frac{\lambda}{2\pi} \int_0^{\pi} \varphi_{\theta}(x,y) * v d\theta \quad (2)$$

式中: $*$ 表示一维卷积,而 v 为CT重建过程中的滤波。

快速重构软件安装在装有CenOS 7系统的DELL T5820工作站,并配备英特尔酷睿i9-9900X处理器(3.5 GHz)和RTX 2080图形处理器(2 944个流处理器,8 GB GDDR6显存),内存Kingston DDR4(64 GB)。重构流程主要包括如图3所示的4个步骤:从硬盘读取投影数据;在CPU上对相位恢复图每一行投影数据 $\varphi_{\theta}(x)$ 的一维傅里叶变换 $P(\omega)$ 做滤波处理;在GPU上实现反投影运算;写重构数据到硬盘^[20]。

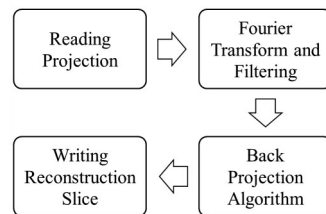


图3 重构流程图
Fig.3 Reconstruction flow chart

3 聚氨酯发泡材料单色光动态CT实验

3.1 CT成像系统的空间分辨能力验证

为了验证该套单色光动态CT成像系统的空间分辨能力,使用分辨率测试卡作为样品成像,测试卡型号为JIMA RT RC-02,光子能量15 keV、自研的快速X光成像探测器切换到5×镜头时的实际空间分辨率测试结果如图4(a)所示,所需曝光时间为2 ms,其中4 μm线宽可以清晰分辨。作为对比,图4(b)为线站已经配备的高分辨快速成像探测器的分辨率测试结果,所需曝光时间为50 ms,该探测器由来自Optique Peter公司的光学转换装置和滨松的Flash4.0相机组合而成,像素阵列2 048(H)×2 048(V),图像位深16 bit,全视场最高帧率每秒25帧。相机基础像素6.5 μm,结合奥林巴斯4×放大镜头探测器,探测器实际有效像素尺寸1.625 μm。使用条纹可见度 $K=(I_{\max}-I_{\min})/(I_{\max}+I_{\min})$ 来对图4的两幅图像的对比度进行评估,现有探测器的条纹可见度仅为12/242=0.049,而自研成像探测系统可以达到45/405=0.11,是现有探测器的两倍以上。从图4可以发现,自研快速X射线成像探测器在空间分辨率与现有探测器相近的情况下,具有更高的探测效率与成像对比度。

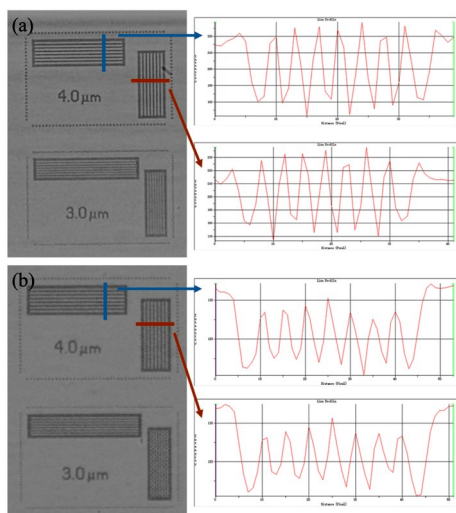


图4 快速X射线成像探测器空间分辨率测试结果
(a) 自研成像探测系统有效像素尺寸2.2 μm时横向及纵向空间分辨率达到4 μm(曝光时间2 ms), (b) 线站现有成像探测系统有效像素尺寸1.625 μm时横向及纵向空间分辨率达到4 μm(曝光时间50 ms)

Fig.4 Test results of spatial resolution of the fast X-ray imaging detector

(a) Horizontal and vertical spatial resolutions of the self-developing imaging detection system reached 4 μm when the effective pixel size is 2.2 μm (exposure time 2 ms),
(b) Horizontal and vertical spatial resolutions of the current imaging detection system reached 4 μm when the effective pixel size is 1.625 μm (exposure time 50 ms)

3.2 CT成像系统的相位衬度分辨能力验证

由于聚氨酯发泡材料本身由碳、氢、氧等轻元素构成,属于X射线弱吸收体系,适合用来验证我们成像系统的相位衬度成像能力。分别使用相位恢复前后的投影数据进行切片重构,得到了未经过相位恢复的吸收像(图5(a))和经过相位恢复的相位像(图5(c))。从两张切片图可以看到,未经相位恢复的吸收像中气泡内外对比度很低,而相位像中气泡内外灰度值差异明显。通过两者的灰度分布直方图(图5(b)和图5(d))也可以更加直观地看出,根据吸收信息难以通过阈值分割将气泡和聚氨酯基底分割开;而包含相位信息的吸收像图5(c)的灰度直方图中,由于气泡和聚氨酯基底的相位因子差异显著,两者被分割为两个峰,从左到右依次表示气泡和聚氨酯基底。此外,在气泡密集、结构复杂的区域,强烈的边缘增强效应造成了严重的伪影,影响后期图像分割与定量分析的精度,而相位恢复后的切片的边缘增强效应造成的伪影更少。

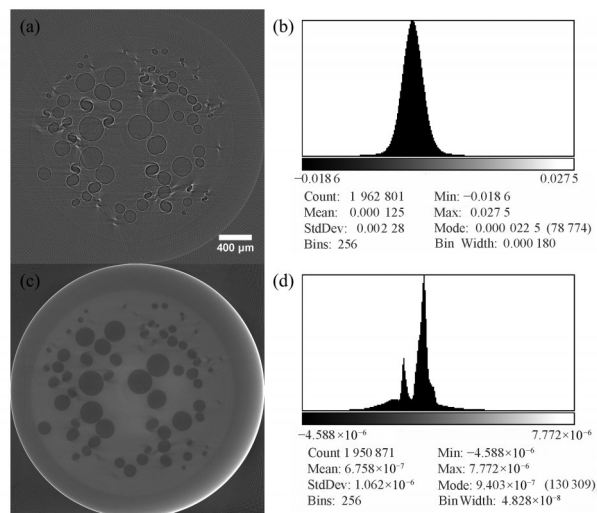


图5 相位恢复前后的气泡重构切片的图像质量对比
(a、c) 相位恢复前后同一位置的切片图, (b、d) 相位恢复前后的灰度分布直方图

Fig.5 Comparison of the image quality of the bubble reconstruction slices before and after phase retrieval the slice image and its histogram at the same position before (a, b) and after phase retrieval (c, d)

基于相移吸收二元性的Paganin单距相位恢复算法进行相位恢复时,由于计算得到的相位恢复图 $\varphi_0(x, y)$ 是与X射线波长 λ 相关的函数。白光包含一个波段的X射线, λ 值不是一个定值,因此,若进行相位恢复无法得到准确的 $\varphi_0(x, y)$,白光动态显微CT无法得到样品准确的定量相位信息。单色光动态显微CT则避免了这一问题,使用单一能量的X射线确

定了唯一的 λ 值,便能得到准确的相位恢复图。图6(a)为经相位恢复后重构得到的相位像,对图6(a)中划线线段处进行线性分析,得到了其相位因子分布图如6(b)所示,其中曲线峰谷部分对应气泡部分的相位因子,曲线峰值部分则对应聚氨酯基底部分的

相位因子。图6(b)显示,经过相位恢复后的重构切片得到的聚氨酯相位因子数值与理论值($\delta=1.01\times 10^{-6}$)相一致,表明单色光动态显微CT能够得到样品准确的定量信息。

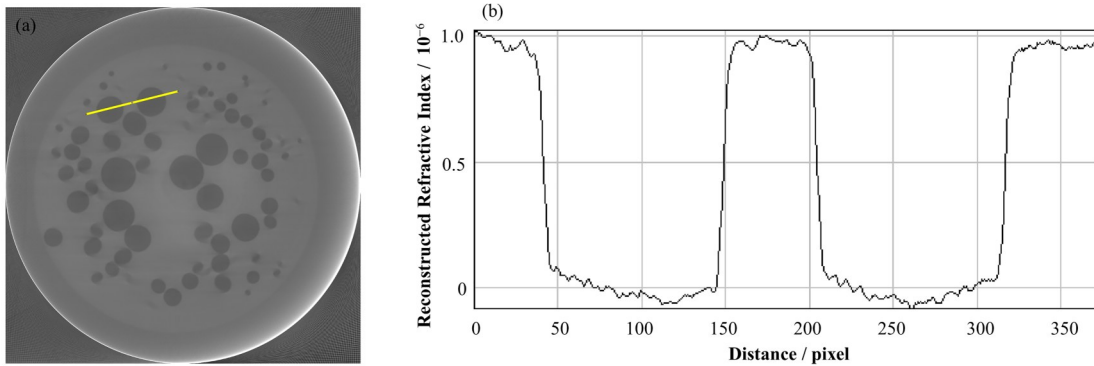


图6 相位恢复后的重构切片(a)和线段处的线性分析(b)
Fig.6 Reconstruction slice after phase retrieval (a) and linear analysis (b) at the line segment

3.3 CT成像系统的时间分辨能力验证

如图7所示,选取不同时刻的重构切片同一层(第400层)进行对比,可以观察到,在时间维度上气泡在二维截面中的变化。从图7可以看到,圈中的气泡从0时刻起开始缓慢缩小,0.3 s开始缩小速度

加快,并最终在1.1 s时在该层中消失,说明前期该气泡的中间位置位于切片高度,后期由于运动和体积变化最终离开了该层切片所处的高度。切片之间的最小时间间隔为50 ms,证明成像系统的动态CT时间分辨率可以达到50 ms。

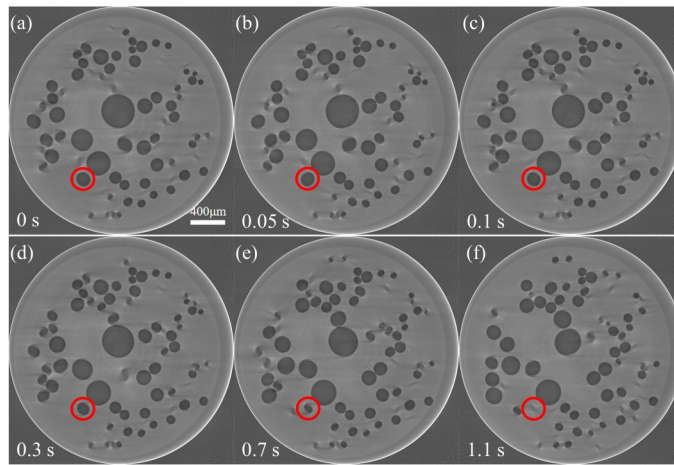


图7 气泡第400层切片随时间的变化
(a) 初始状态的切片,(b~f) 0.05 s、0.1 s、0.3 s、0.7 s、1.1 s时刻的切片

Fig.7 Bubble variation over time at the 400th slice
(a) The slice in the initial state, (b~f) The slice at time 0.05 s, 0.1 s, 0.3 s, 0.7 s, and 1.1 s

3.4 高精度三维定量分析能力验证

基于成像系统的高空间分辨能力、衬度分辨能力以及时间分辨能力,对发泡过程中微气泡的运动过程进行的三维定量分析。图8(a)展示了初始时刻气泡的三维空间分布,剔除掉超出视场导致部分缺失的,一共追踪到998个完整的气泡。可以看到,大气泡主要分布在管子中心部分,而小气泡主要分布

在四周边缘部分。图8(b)为气泡直径的统计直方图,分布范围为50~300 μm ,呈现近似高斯分布,大部分气泡的直径在110 μm 左右,直径在80~140 μm 的气泡占了总体的56%。

利用数字体图像相关(Digital Volume Correlation, DVC)技术,将三维结构划分为250 $\mu\text{m}\times 250 \mu\text{m}\times 250 \mu\text{m}$ 的子区域,通过比较初始时刻和

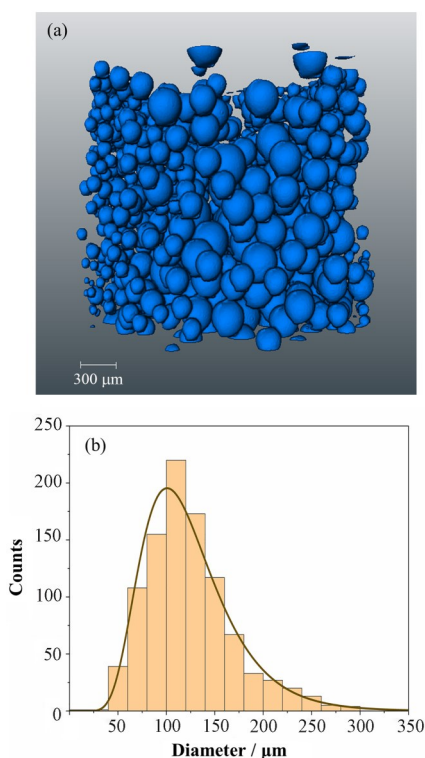


图8 初始时刻气泡的三维空间分布(a)与气泡直径的统计直方图(b)

Fig.8 Three-dimensional spatial distribution of bubbles at the initial time (a), statistical histogram of bubble diameter (b)

1.1 s时刻各子区域的三维图像来检索全场位移,最终获得了这段时间内子区域的三维运动矢量场(图9),箭头的方向代表各子区域的整体位移方向,箭头的大小代表子区域位移变化量。从图9可以看出,处于PMMA管边缘位置的较小的气泡整体呈向下移动的趋势,而靠近管中心位置的大气泡整体则呈向上移动的趋势。

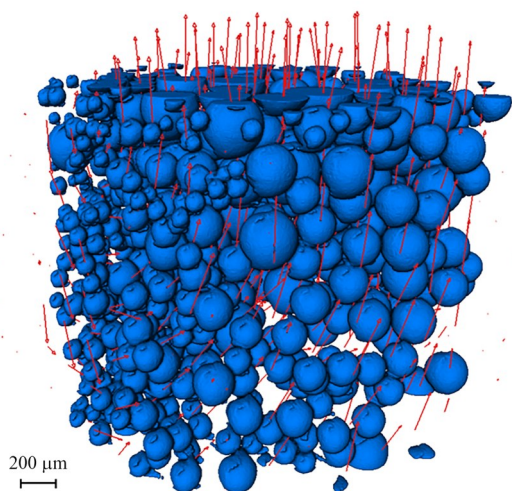


图9 采用DVC分析得到的气泡的三维运动矢量图(彩图见网络版)

Fig.9 Three-dimensional motion vector diagram of bubbles obtained by DVC analysis (color online)

通过统计每个气泡在初始时刻以及1.1 s时刻的重心位置坐标,计算这段时间内气泡运动的平均速度,从而进一步细化分析平均速度与空间位置、直径的关系,结果如图10所示。图10(a)中各圆点为俯视视角下各气泡重心的位置分布,伪彩色则对应了各气泡的平均速度,红色表示向上运动,数值为正,蓝色表示向下运行,数值为负。从总体趋势上看,管子中心线(图10(a)坐标原点)位置的气泡向上运动,管壁附近的气泡向下运动,从而在管子内部形成一组对流。所有气泡平均速度的统计直方图如图10(b)所示,处于上升气泡的速度主要在 $40 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 左右,下降气泡则只有 $-30 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 左右,但速度差异更小,更加统一。从图10(c)中气泡平均速度与径向距离的关系可以看出,随着径向距离的增加,气泡上升的速度出现了明显的下降,距离中心线约 $900 \mu\text{m}$ 为上升气泡和下降气泡的分水岭,也对应着聚氨酯发泡过程中对流的交汇层。此外,图7(c)中下降气泡的分布密度非常高,这也印证了图10(b)中运动速度的高度均一性。进一步统计气泡平均速度与直径的关系,如图10(d)所示,上升气泡的体积大体上相对于下降气泡要更大一些,并且上升气泡的体积更加分散,而下降气泡体积主要集中在 $100 \mu\text{m}$ 尺寸附近。综上所述,结合DVC的结果以及图10的分析可以得出,体积较大的气泡大多位于管子中心线附近,并且上升速度较快,而体积较小的气泡主要位于管壁附近,主要呈现下降趋势,体积和速度都较为统一。这种现象的主要原因推测为气泡浮力与反应液体黏滞力之间的相互作用不同,浮力与气泡的体积(半径三次方)成正比,但周围液体的黏滞力主要与气泡的表面积(半径平方)相关,所以体积大的气泡上升速度更快,并排挤上层空间,导致上层的液体沿着管壁向下形成对流,管壁附近的气泡上升速度不够快,被迫跟着液体一起下降。

除了整个过程中平均速度的分析,基于整套系统的高时间分辨特性,我们可以追踪每个气泡在每个时间点上的直径和三维空间位置,为动力学原理研究提供了有力工具。图11(a)中的每个点代表某一时点气泡的重心位置,颜色梯度对应了时间顺序,因此气泡运动的过程就体现为图中一条条从蓝到黄的细线。位于接近中心的轨迹方向向上且相比边缘处的向下的轨迹更长,与DVC分析和平均速度分析的结果一致。从所有气泡中选取处于上升运动的大气泡和小气泡各一个进行具体分析,单独绘制了两者的运动轨迹如图11(b)和(c)所示,前者是一条笔直的直线,且各点之间的间隔较为平均,表明气泡运动得很稳定。而后者为一条斜率逐渐变大的曲

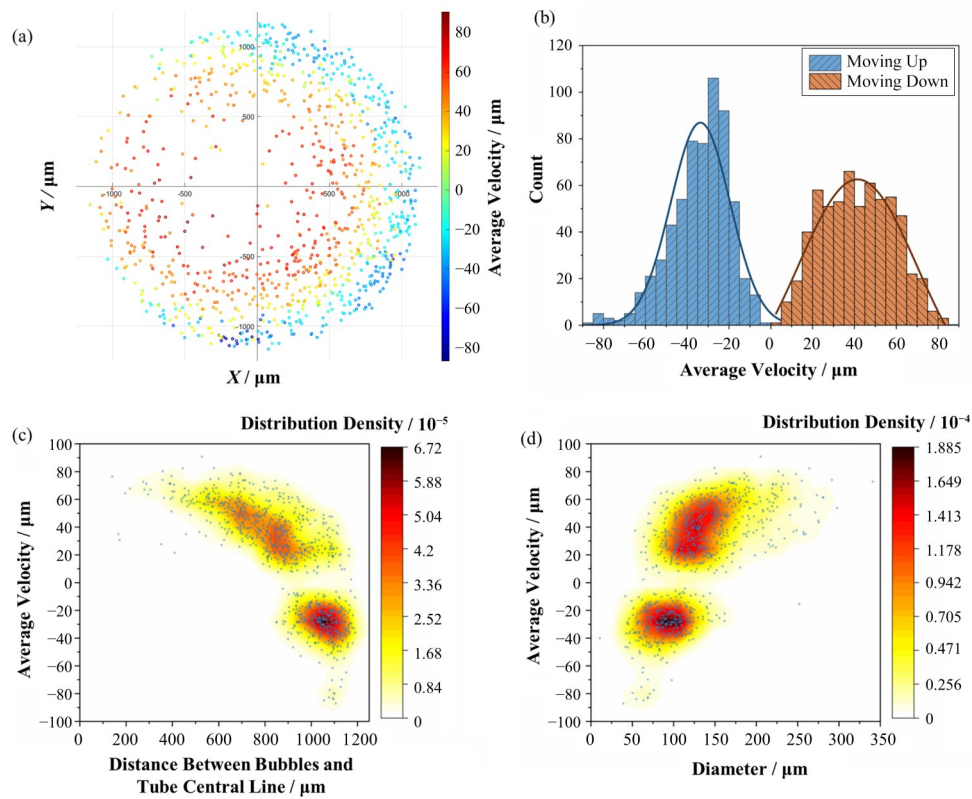


图10 微气泡运动的平均速度与气泡空间位置和气泡直径的关系分析(彩图见网络版)

(a) 俯视视角下的气泡及其运动平均速度的径向分布,(b) 气泡运动的平均速度与径向距离的关系,(c) 气泡运动的平均速度与气泡直径的关系,(d) 气泡运动的平均速度与气泡直径的关系

Fig.10 Analyses of the relationship between the average velocity and spatial location, along with the diameter of the bubbles (color online)
(a) Radial distribution of the bubbles from the top view, whose average velocities were marked in different colors, (b) Statistical histogram of the average velocity of all bubbles, (c) Relationship between the average velocity and radial location of the bubbles, (d) Relationship between the average velocity and diameter of bubbles

线,后期点间距明显比前期要大,说明气泡上升速度在加快,气泡运动不稳定。对比两者直径随时间的变化曲线(图11(d)),发现虽然两者的直径差距较大且都在增长,但大气泡直径的增长速度 $11 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$,要明显低于小气泡直径的增长速度 $24 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$,说明小气泡附近的聚合反应相对于大气泡更加剧烈一些。此外,通过每隔 50ms 计算出来的气泡瞬时速度随时间的变化,可以看出大气泡的上升速度稳定在 $82 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 左右,而小气泡在 1.1s 的时间内从缓慢的 $27 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 加速至 $79 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$,速度已经接近大气泡,这说明局部反应越剧烈,气泡运动的加速度越大。

4 结语

相较于X射线白光动态显微CT,X射线单色光动态显微CT具有更低的辐射损伤以及更高的密度分辨能力,但更低的光子通量密度严重限制了单色光动态显微CT的空间分辨率和时间分辨率,目前国际上单色光动态显微CT在 $5 \mu\text{m}$ 有效像素尺寸条件下已实现最高 13.3Hz 时间分辨率。本文基于上海光源BL16U2线站波荡器光源的高通量密度的单色

光,利用高速转台和大数值孔径的三镜头快速X射线成像系统,搭建了一套高时空分辨的X射线单色光动态显微CT系统,并以速发型聚氨酯发泡材料体系作为研究对象进行了验证性实验,在 15keV 单色光条件下成功实现了 20Hz 的时间分辨率(50ms 采集一套CT数据)和 $4 \mu\text{m}$ 空间分辨率(探测器有效像素尺寸 $2.2 \mu\text{m}$),实验结果证明了该系统的高时间分辨能力、高空间分辨能力和高衬度分辨能力,并对发泡材料体系中气泡的空间分布、平均速度、瞬时速度、膨胀速度等多个参数进行了定量分析,探究了发泡过程的动力学原理,证明了本文建立的高时空分辨X射线单色光动态显微CT实验系统对复杂运动体系具备四维时空定量分析能力,为上海光源快速成像线站用户开展高时空分辨复杂原位实验研究提供了强大的实验研究平台。

作者贡献声明 仇正杰负责实验数据的收集和整理、文章的起草和最终版本的修订;李可负责实验的设计、数据的整理、文章最终版本的修订;谢红兰负责研究的提出及设计、文章最终版本的修订、项目的监督和管理;杜国浩负责实验的设计、数据的整理;

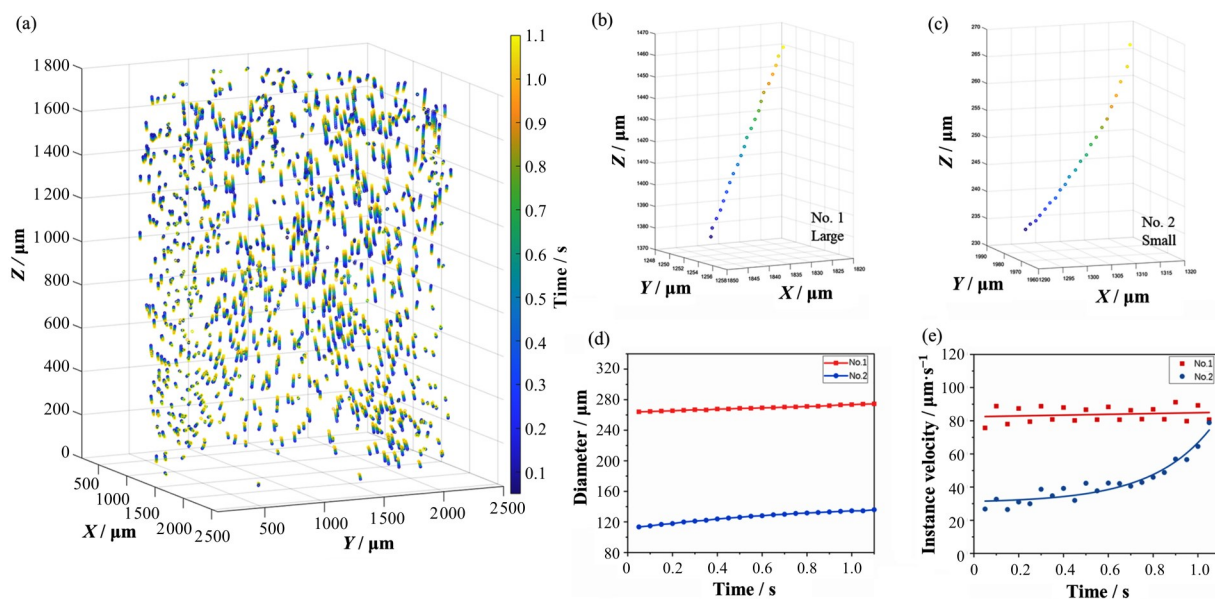


图 11 气泡瞬时运动状态分析(彩图见网络版)

(a) 气泡重心随时间变化的三维轨迹图, (b, c) 典型大、小气泡的运动轨迹, (d) 两种气泡直径随时间变化的关系, (e) 两种气泡瞬时速度与时间的关系

Fig.11 Analyses of the instantaneous state of bubbles (color online)

(a) Chronological variation of central locations of all bubbles, (b, c) Moving routes of a typical large bubble and a small one, (d) Increase in diameters of two bubbles over time, (e) Relationship between instantaneous velocities of two bubbles and time

邓彪负责最终版本的修订;肖体乔负责项目的监督和管理。

参考文献

- 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): 102. DOI: [10.1007/s41365-020-00805-7](https://doi.org/10.1007/s41365-020-00805-7).
- 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): 9 - 23. DOI: [10.3788/aos201434.0100001](https://doi.org/10.3788/aos201434.0100001).
XIAO Tiqiao, XIE Honglan, DENG Biao, *et al.* Progresses of X-ray imaging methodology and its applications at Shanghai synchrotron radiation facility[J]. Acta Optica Sinica, 2014, **34**(1): 9 - 23. DOI: [10.3788/aos201434.0100001](https://doi.org/10.3788/aos201434.0100001).
- Vegso K, Wu Y L, Takano H, *et al.* Development of pink-beam 4D phase CT for *in situ* observation of polymers under infrared laser irradiation[J]. Scientific Reports, 2019, **9**: 7404. DOI: [10.1038/s41598-019-43589-6](https://doi.org/10.1038/s41598-019-43589-6).
- Maire E, Le Bourlot C, Adrien J, *et al.* 20 Hz X-ray tomography during an *in situ* tensile test[J]. International Journal of Fracture, 2016, **200**(1): 3 - 12. DOI: [10.1007/s10704-016-0077-y](https://doi.org/10.1007/s10704-016-0077-y).
- Momose A, Yashiro W, Harase S, *et al.* Four-dimensional X-ray phase tomography with Talbot interferometry and white synchrotron radiation: dynamic observation of a living worm[J]. Optics Express, 2011, **19**(9): 8423 - 8432. DOI: [10.1364/OE.19.008423](https://doi.org/10.1364/OE.19.008423).
- Xie H L, Luo H X, Du G H, *et al.* High-efficiency fast X-ray imaging detector development at SSRF[J]. Journal of Synchrotron Radiation, 2019, **26**(Pt 5): 1631 - 1637. DOI: [10.1107/S1600577519010075](https://doi.org/10.1107/S1600577519010075).
- Labriet H, Nemoz C, Renier M, *et al.* Significant dose reduction using synchrotron radiation computed tomography: first clinical case and application to high resolution CT exams[J]. Scientific Reports, 2018, **8**(1): 12491. DOI: [10.1038/s41598-018-30902-y](https://doi.org/10.1038/s41598-018-30902-y).
- Sakakibara H, Maeda K, Nakahara Y, *et al.* Evaluation of energy-subtraction CT images using diffracted monochromatic X rays[M]//IFMBE Proceedings. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2009: 79 - 82. DOI: [10.1007/978-3-642-03879-2_23](https://doi.org/10.1007/978-3-642-03879-2_23).
- Narumi T, Nakata T, Yasuda H. Observation of semisolid deformation by using 4D-CT and 3DXRD[J]. IOP Conference Series: Materials Science and Engineering, 2020, **861**(1): 012065. DOI: [10.1088/1757-899x/861/1/012065](https://doi.org/10.1088/1757-899x/861/1/012065).
- Narumi T, Nakata T, Kobayashi R, *et al.* Time-resolved and *in-situ* observation of semisolid deformation in Al-Cu alloys with equiaxed and columnar grain structures by

- using a combination technique of 4D-CT and 3DXRD[J]. ISIJ International, 2021, **61**(5): 1567 - 1578. DOI: [10.2355/isijinternational.isijint-2020-650](https://doi.org/10.2355/isijinternational.isijint-2020-650).
- 11 Eggert A, Müller M, Nachtrab F, *et al.* High-speed *in situ* tomography of liquid protein foams[J]. International Journal of Materials Research, 2014, **105**(7): 632 - 639. DOI: [10.3139/146.111057](https://doi.org/10.3139/146.111057).
- 12 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. DOI: [10.1038/srep32380](https://doi.org/10.1038/srep32380).
- 13 Shahani A J, Xiao X H, Lauridsen E M, *et al.* Characterization of metals in four dimensions[J]. Materials Research Letters, 2020, **8**(12): 462 - 476. DOI: [10.1080/21663831.2020.1809544](https://doi.org/10.1080/21663831.2020.1809544).
- 14 Takano H, Morikawa M, Konishi S, *et al.* Development of real-time X-ray microtomography system[J]. Journal of Physics: Conference Series, 2013, **463**: 012025. DOI: [10.1088/1742-6596/463/1/012025](https://doi.org/10.1088/1742-6596/463/1/012025).
- 15 Henke B L, Gullikson E M, Davis J C. X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at $E = 50 - 30,000$ eV, $Z = 1 - 92$ [J]. Atomic Data and Nuclear Data Tables, 1993, **54**(2): 181 - 342. DOI: [10.1006/adnd.1993.1013](https://doi.org/10.1006/adnd.1993.1013).
- 16 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. DOI: [10.1107/s0909049512029731](https://doi.org/10.1107/s0909049512029731).
- 17 Paganin D, Mayo S C, Gureyev T E, *et al.* Simultaneous phase and amplitude extraction from a single defocused image of a homogeneous object[J]. Journal of Microscopy, 2002, **206**(1): 33 - 40. DOI: [10.1046/j.1365-2818.2002.01010.x](https://doi.org/10.1046/j.1365-2818.2002.01010.x).
- 18 Gureyev T E, Davis T J, Pogany A, *et al.* Optical phase retrieval by use of first Born- and Rytov-type approximations[J]. Applied Optics, 2004, **43**(12): 2418 - 2430.
- 19 Chen R C, Rigon L, Longo R. Quantitative 3D refractive index decrement reconstruction using single-distance phase-contrast tomography data[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2011, **44**(49): 495401. DOI: [10.1088/0022-3727/44/49/495401](https://doi.org/10.1088/0022-3727/44/49/495401).
- 20 张园, 谢红兰, 杜国浩, 等. 基于GPU并行计算的X射线动态显微CT的快速重构[J]. 核技术, 2021, **44**(6): 060101. DOI: [10.11889/j.0253-3219.2021.hjs.44.060101](https://doi.org/10.11889/j.0253-3219.2021.hjs.44.060101). ZHANG Yuan, XIE Honglan, DU Guohao, *et al.* Fast reconstruction of X-ray dynamic micro-CT based on GPU parallel computing[J]. Nuclear Techniques, 2021, **44**(6): 060101. DOI: [10.11889/j.0253-3219.2021.hjs.44.060101](https://doi.org/10.11889/j.0253-3219.2021.hjs.44.060101).