

УДК 541.64:539.2

КОМПЬЮТЕРНЫЙ АНАЛИЗ МОРФОЛОГИИ МНОГОФАЗНЫХ СМЕСЕЙ ПОЛИМЕРОВ¹

© 1999 г. М. А. Летучий*, Л. Я. Клеппер**, Ю. П. Мирошников*

*Московская академия тонкой химической технологии им. М.В. Ломоносова
117571 Москва, пр. Вернадского, 86

**Центральный экономико-математический институт Российской академии наук
117572 Москва, пр. Нахимова, 47

Поступила в редакцию 17.03.98 г.
Принята в печать 18.05.98 г.

Предложен интерактивный метод количественной обработки изображений фазовой структуры смесей полимеров и других систем с использованием сканера и персонального компьютера. Графические точечные файлы, полученные сканированием высококачественных контрастных микрофотографий объектов, не несущих артефактов и инородных включений, обработаны в автоматическом режиме, а слабоконтрастные изображения, характеризующиеся наличием оптического клина, артефактов и других дефектов, – с помощью оператора. В частности, полуавтоматической является операция распознавания визуально похожих областей изображения, принадлежащих частицам дисперской фазы и матрице. В результате компьютерной обработки получена количественная информация о параметрах морфологии – распределении по размерам, форме частиц дисперской фазы, удельной межфазной поверхности, дисперсии и т.п. Метод применим для анализа многофазных гетерогенных систем, прост, универсален, надежен и доступен практически любой лаборатории.

Фазовая морфология является одним из основных структурных параметров, определяющих количественные свойства термодинамически несовместимых смесей полимеров. Гетерогенная структура таких материалов представлена как правило микрообъемами одной полимерной фазы, диспергированными в матрице другого полимера. Элементы внутренней фазы могут иметь форму дискретных частиц или формировать непрерывную сетку. В любом случае при хорошем качестве смешения диспергированные микрообъемы имеют микронные или субмикронные размеры. Поэтому для анализа морфологии смесей полимеров обычно используют методы трансмиссионной (ТЭМ) или сканирующей (СЭМ) электронной микроскопии.

Для установления надежных корреляций морфология – свойство качественная трактовка полученных микроснимков фазовой структуры представляется явно недостаточной. В связи с этим возникает проблема количественного описания

гетерогенной структуры, сопряженная в свою очередь с выбором, обоснованием и реализацией надлежащего компьютерного метода распознавания и анализа изображений. Реализованные к настоящему времени подходы к решению подобных задач характеризуются большим разнообразием и простираются от сложных промышленных специализированных приборов-комплексов, предназначенных для обработки изображений с фотоснимков или фотопленок (например, "Quantimet 720" [1]), оптических или электронных микроскопов с возможностью вывода изображений с экрана на ЭВМ до полуавтоматических [2] и ручных [3] способов.

Не вдаваясь в анализ обширной литературы, посвященной рассматриваемому вопросу, остановимся на одной проблеме, являющейся общей практически для всех существующих методов анализа изображений. Речь идет об идентификации границы раздела фаз частица дисперской фазы – матрица. Особенно актуальной эта проблема является для изображений фазовых структур смесей полимеров, полученных с помощью ТЭМ. В связи с известным явлением дифракции электронных пучков, а также эффектами формирова-

¹ Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (код проекта 97-03-32699а).

ния переходных слоев в полимер-полимерных системах [4, 5] граница раздела фаз всегда выглядит существенно размытой [6, 7] и тем в большей степени, чем толще анализируемый срез. Поэтому корректная идентификация контура частиц дисперсной фазы непосредственно определяет адекватность метода в целом.

Микроснимок фазовой структуры смеси полимеров представляет собой как правило черно-белое изображение, на котором частицы и матрица визуально различаются по оптической плотности. При этом практически во всех реальных случаях отсутствуют абсолютно черный и белый цвета. Фазы полимеров выглядят как области, имеющие более интенсивный и менее интенсивный серый "цвет". Таким образом, контрастность фотографии определяется диапазоном изменения интенсивности серого в областях, принадлежащих частицам и матрице.

Графический точечный файл, получаемый при сканировании такого изображения, представлен массивами точек (пиксел) различной интенсивности, т.е. выражен в градациях серого. Каждый пиксел представляет собой квадрат с размерами, определяемыми заданным разрешением изображения при сканировании. Если полученное изображение зафиксировать в плоскости x, z пространственной системы декартовых координат, то каждой его точке с координатами x_i, z_i будет соответствовать интенсивность I_i с ординатой y_i . Графическое выражение функции интенсивности каждой точки от ее координат на изображении – некая сложная поверхность, сечение которой вертикальной плоскостью представляет собой профиль интенсивностей в данном сечении. Полученная функция является исходной для дальнейшей математической обработки изображения.

Одна из главных задач обработки изображения – корректная идентификация границы раздела фаз. В работе [1] за таковую принимают изолинию из точек со значением интенсивности, равной половине разности ($I_{1\max} - I_{2\min}$)/2, где I_1 и I_2 – интенсивности точек, принадлежащих частицам и матрице соответственно. Авторы [8] полагают, что границей раздела следует считать линию перегиба поверхности функции интенсивности, поскольку она больше соответствует зритальному восприятию изображения. Этот подход особенно полезен для объектов с сильно размытой границей раздела фаз. Известны также иные варианты способов распознавания частиц [9, 10] и методов предварительной обработки изображений

[11]. Однако все они обеспечивают получение надежных результатов при условии, что критерий, принятый для идентификации одной частицы, применим ко всему изображению с множеством частиц.

Это условие удовлетворяется обычно для контрастных изображений, когда флуктуации интенсивностей точек внутри каждого из массивов невелики по сравнению с разностью интенсивностей между частицами и матрицей. В слабоконтрастных изображениях, очень часто встречающихся в практике работы со смесями полимеров, интенсивности отдельных участков фона (матрицы) и частиц дисперсной фазы близки, а иногда и перекрываются. Это может быть обусловлено как качеством ультратонких срезов и микрофотографий (оптический клин, гофроподобный срез, различного рода артефакты и инородные включения), так и природой самих объектов (например, невозможность селективного контрастирования фаз полимеров).

Самостоятельную серьезную проблему представляет обработка изображений для многофазных смесей полимеров. Так, в случае трехфазных систем необходимо распознавание частиц, принадлежащих двум различным дисперсным фазам. При использовании традиционных методов обработки обычная в подобных случаях минимальная разница между оптической плотностью дисперсных фаз на изображениях приводит [12, 13] к получению некорректных результатов. Дальнейшее увеличение числа полимеров в смеси сопровождается еще более серьезными осложнениями. Разумеется, большую часть отмеченных трудностей можно преодолеть при использовании специализированных программных комплексов типа [1]. Однако очень высокая стоимость и необходимость в квалифицированном обслуживании делает их малодоступными для большинства лабораторий.

Опыт работы с несовместимыми смесями полимеров привел к выводу о том, что оптимальными являются человеко-машические (интерактивные) способы распознавания и обработки изображений. Главные их достоинства состоят в простоте и универсальности, так что даже значительное изменение характеристик изображения не требует перестройки или изменения программы. В настоящей работе предлагается краткое описание интерактивного метода распознавания и количественной обработки изображений. Программа построена в диалоговом режиме, допускает вмешательство на любой стадии обработки изображения и требует

квалификации оператора на уровне пользователя персональным компьютером.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Исходным этапом анализа изображения является получение микрофотографии как можно более высокого качества. Разумеется, должна быть точно определена общая степень увеличения изображения объекта на фотографии. В целях экономии фотоматериалов и во избежание частичной потери информации размеры изображения не должны выходить за пределы окна сканирования, определяющегося имеющимся сканером. В нашем случае использован ручной черно-белый сканер "Mustek GS-800" с размером окна сканирования 10×10 см и разрешением от 100 до 800 точек/дюйм (размер пиксел меняется соответственно от 0.25 до 0.0312 мм). В соответствии с возможностями сканера и характером и качеством изображения полезно выбрать оптимальную степень увеличения изображения на фотографии, руководствуясь следующими соображениями. Число частиц дисперсной фазы, гарантирующее корректную статистическую обработку результатов для каждого объекта, должно быть не менее 300–400 [14]. Точность расчета геометрических параметров частицы растет с увеличением площади ее изображения на фотографии. Таким образом, чем выше требования к точности эксперимента, тем большей должна быть степень увеличения изображения на фотографии и тем больше фотографий данного объекта следует получить и обработать, чтобы набрать указанное количество частиц.

Принцип сканирования заключается в том, что площадь фотографии делится на n полос, а каждая полоса – на m частей, так что все изображение оказывается разбитым на nm квадратов (пиксел). Для каждого квадрата определяется средняя интенсивность I_i в уровнях серого в интервале 0–225 (0 – черный, 225 – белый) и его положение на плоскости. Таким образом, файл, введенный в ЭВМ со сканера, представляет собой изображение фотографии, сформированное из пиксел определенного единичного размера и интенсивности, каждый из которых зафиксирован на своем месте в координатной сетке на плоскости.

Следующий этап обработки изображения заключается в идентификации принадлежности каждого из пиксел частицам дисперсной фазы или фону (матрице), т.е. в выделении частиц и определении границы раздела фаз. Набор и трудоемкость операций, осуществляемых на этом эта-

пе, в существенной мере определяется качеством и характером исследуемого изображения. Поэтому полезно предварительно провести классификацию фотографий по ряду важных признаков.

Классификация фотографий

Как упоминалось ранее, основной проблемой в рассматриваемых задачах является корректная идентификация границы раздела фаз, определяющая в целом достоверность конечных результатов. Решение подобных задач при обработке любого полутонового изображения, сформированного точками, имеющими некий интервал градаций серого, сводится к преобразованию его в истинно черно-белое изображение, называемое бинарным [15].

В связи с этим к первому типу следует отнести "идеальные" изображения, сформированные точками (пикселями) только с двумя уровнями интенсивности, один из которых соответствовал бы частицам дисперсной фазы, другой – фону (матрице).

Ко второму типу относятся качественные микрофотографии с высоким межфазным контрастом. Такие изображения также просто преобразовать в бинарные. Граница раздела фаз идентифицируется точками с интенсивностью, равной полусумме максимальных интенсивностей точек, принадлежащих частицам и фону.

Третий тип представляют низкоконтрастные снимки, на которых интенсивности частиц дисперсной фазы и неоднородности фона близки. Обработка таких изображений требует использования специальных подходов, анализ которых является основной целью настоящей работы.

Достаточно строгим критерием для отнесения изображений к одному из трех указанных выше типов может служить вид гистограммы распределения интенсивностей пиксел на плоскости фотографии. По оси абсцисс отложены значения интенсивностей (уровни серого), а по оси ординат – доля точек с данным значением интенсивности. Выведение на экран монитора гистограммы после сканирования каждой фотографии предусмотрено программой. Гистограмма для изображений первого типа представлена двумя отдельными пиками I_1 и I_2 (для наглядности на рис. 1а они изображены прямоугольниками, хотя на самом деле это две вертикальные прямые линии). Изображения второго типа также характеризуются гистограммой с двумя главными пиками (рис. 1б), принадлежащими частицам дисперсной фазы и матрице. Однако между ними расположены группы промежуточных значений I_i характеризующих как диф-

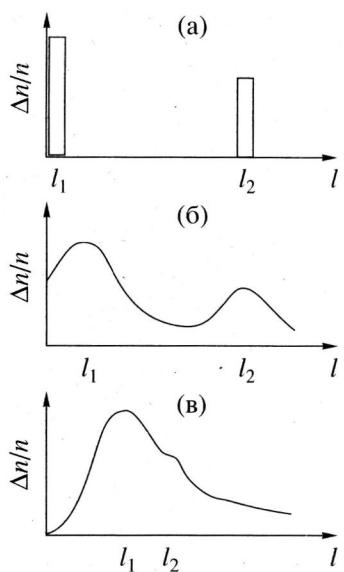


Рис. 1. Форма гистограмм распределения интенсивностей пиксел на идеальном бинарном (а), контрастном (б) и слабоконтрастном (в) изображениях.

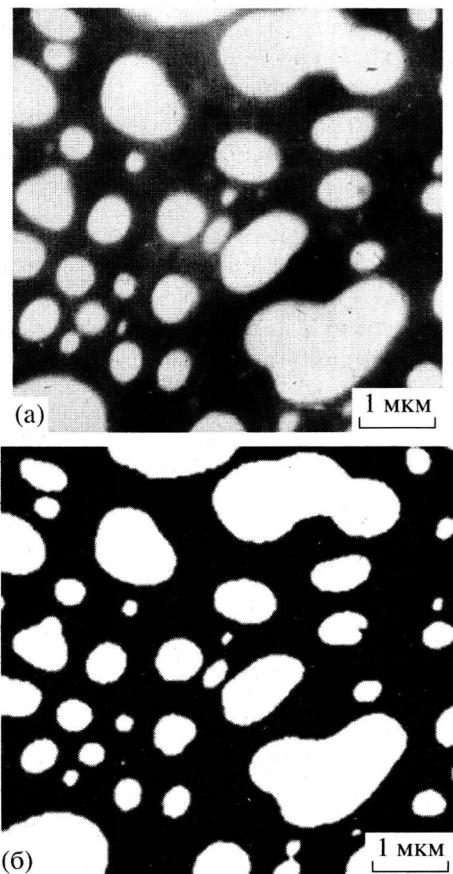


Рис. 2. Микрофотография ТЭМ ультратонкого среза (а) и соответствующая компьютерная копия (б) морфологии смеси БК : ПХП = 40 : 60, иллюстрирующие распознавание контрастных изображений.

фузную границу раздела, так и флуктуации интенсивностей пиксел внутри каждой из фаз. Изображения третьего типа описываются гистограммой, представленной на рис. 1в. Здесь пики интенсивностей, соответствующие отдельным фазам, в значительной мере перекрываются. Стандартная программа анализа изображений, применяющаяся для предыдущих случаев, становится некорректной, поскольку не обеспечивает уверенное распознавание частиц дисперсной фазы. Именно для таких случаев и разработана предлагаемая методика.

Преобразование изображения в градациях серого в бинарное изображение

Преобразование изображений второго типа в бинарные методом граничной интенсивности проиллюстрируем на примере микрофотографии ТЭМ ультратонкого среза смеси бутилкаучук (БК): полихлоропрен (ПХП) = 40 : 60 (рис. 2а). Выбирают граничное значение интенсивности I^* , соответствующее среднему значению по отношению к средним интенсивностям частиц и матрицы. Всем точкам (пикселям) с интенсивностями $0 \leq I_i < I^*$ присваивают уровень серого $I = 0$ (матрица), а точкам с интенсивностью $I^* < I_i \leq 255$ – уровень серого $I = 255$ (частицы дисперсной фазы). Полученное бинарное изображение (рис. 2б) соответствует зрительному восприятию геометрических размеров структурных элементов на оригинальном микроснимке (рис. 2а).

Если этот способ использовать для обработки слабоконтрастного изображения ультратонкого среза смеси ПММА : ПС = 40 : 60 (рис. 3а), то значительная часть информации не распознается (рис. 3б), следовательно, конечный результат будет априори некорректным. Главным причиной неудовлетворительного распознавания изображения связана с большими флуктуациями интенсивностей пиксел ("шумами") внутри каждой из фаз. Шумы могут быть обусловлены как низким качеством среза или подложки (разнотолщинность и т.п.), присутствием иородных включений и артефактов, так и низким качеством фотоматериалов и(или) непрофессиональной их обработкой. Вследствие небольшой разницы между средними интенсивностями частиц и матрицы часть фона была идентифицирована как частицы (рис. 3б).

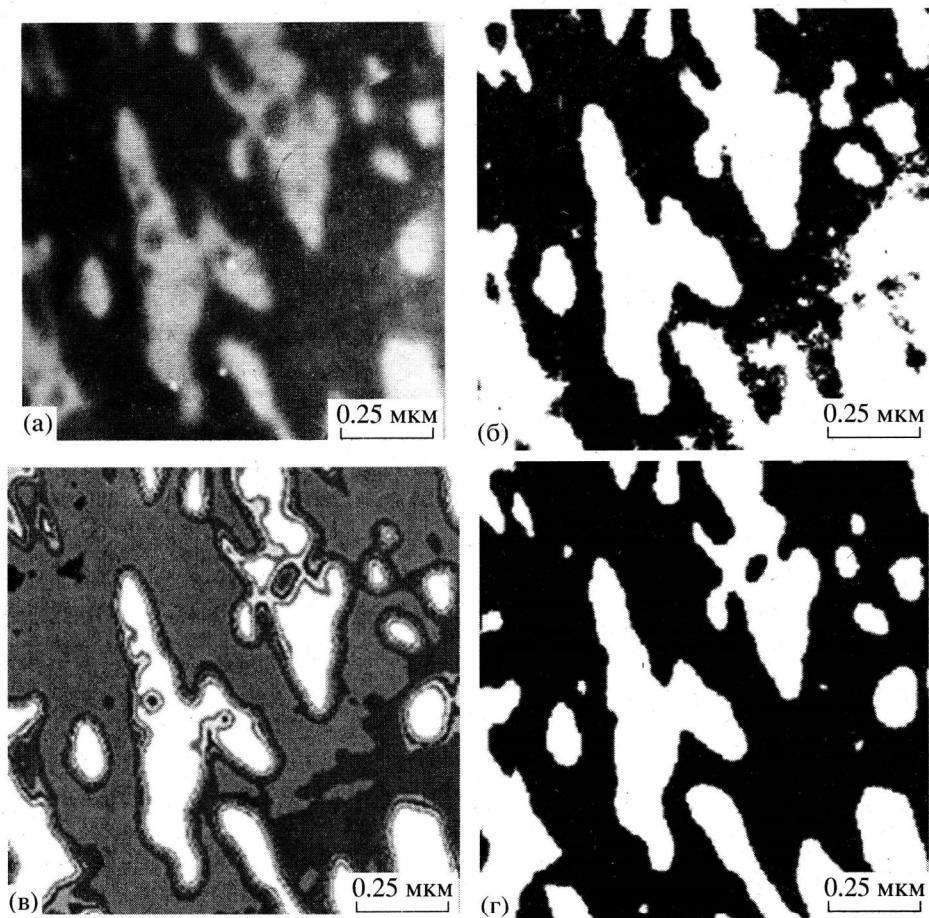


Рис. 3. Изображения фазовой структуры смеси ПММА : ПС = 40 : 60, формирующиеся на различных стадиях компьютерного анализа слабоконтрастной микрофотографии: а – исходная микрофотография ТЭМ ультратонкого среза; б – бинарное изображение, полученное методом выбора граничной интенсивности; в – изображение топографического типа после пяти циклов сглаживания; г – конечное бинарное изображение, пригодное для количественного анализа параметров фазовой структуры.

Для устранения мелких шумов необходимо выравнивание (сглаживание) интенсивностей на изображениях каждой из фаз. Смысл автоматической операции сглаживания состоит в последовательном усреднении интенсивностей двух соседних пиксел по всей площади изображения [16]

$$I'_1 = (I_1 + I_2)/2; \quad I'_2 = (I_2 + I_3); \quad I'_3 = (I_3 + I_4); \\ I'_n = (I_n + I_{n+1})$$

В результате нескольких таких операций значения интенсивностей, принадлежащих частицам дисперсной фазы и матрицы, идентифицируются более уверенно. Для решения вопроса о необходимом числе циклов сглаживания обработанное изображение трансформируют в топографическое. Для этого полный интервал интенсивностей разбивают на 20 равных подинтервалов и строят изображение, представляющее собой проекции линий пересечения поверхности отклика двадца-

тью плоскостями, параллельными плоскости xz . Операции сглаживания повторяют до тех пор, пока каждая частица дисперсной фазы не окажется окруженной четырьмя-шестью гладкими изолиниями, характеризующими диффузную границу раздела. Опыт показывает, что для удаления наиболее часто встречающихся видов шумов достаточно трех-пяти циклов сглаживания.

Окончательную операцию по распознаванию изображения (идентификацию границы раздела фаз) удобнее проводить с использованием цветовой палитры. Для этого каждому из 20 интервалов присваивали собственный цвет, так что изображение на экране монитора состояло из хорошо визуально различимых цветовых областей. Среди них частицы четко идентифицировались как области, окаймленные несколькими близко расположеннымми изолиниями (рис. 3в). Задачей данного этапа является окончательное удаление шумов и артефактов как областей, не принадлежащих

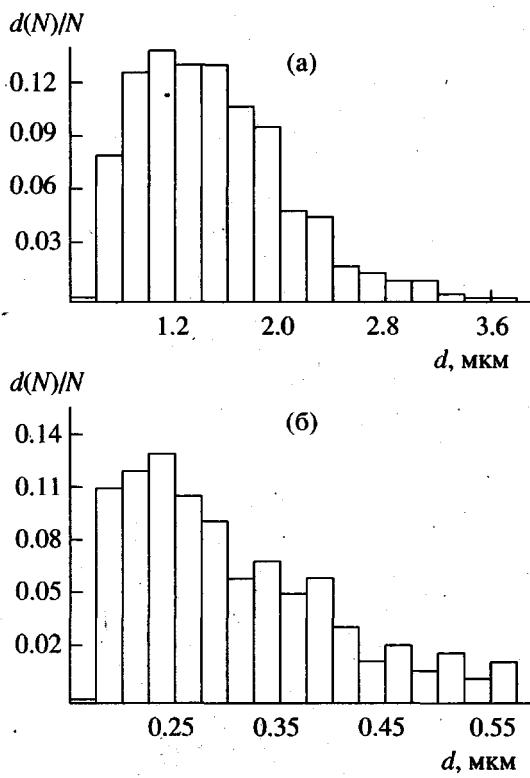


Рис. 4. Гистограммы распределения диаметров частиц дисперсной фазы по размерам и количественные параметры морфологии в смесях БК : ПХП = 40 : 60 (а) и ПММА : ПС = 40 : 60 (б).

частицам, матрице и диффузной границе раздела фаз. Эта процедура может быть автоматизирована. Пока же она в основном проводится вручную: последовательно отмечают курсором "инородные" цветовые области, находящиеся в частицах и дисперсионной среде и присваивают им соответствующие цвета частиц и матрицы. Правильность операций контролируют сопоставлением изображений на экране монитора и на оригинальной микрофотографии. После завершения обработки изображение преобразовывали в бинарное

Результаты сравнения средних диаметров частиц, рассчитанных ручным (D_p) и интерактивным (D_u) способами

Изображения	D_p , мкм (%)	D_u , мкм (%)	$\frac{D_p - D_u}{D_p}$, %
Контрастные (БК : ПХП = 40 : 60)	1.53(±5.5)	1.50(±0.8)	2.1
Малоконтрастные (ПММА : ПС = 40 : 60)	0.32(±9.8)	0.30(±4.2)	6.3

Примечание. В скобках указана ошибка измерений.

(рис. 3г) с использованием метода граничной интенсивности подобно тому, как это делали с контрастными микрофотографиями.

Количественный анализ бинарных изображений

В основу количественной обработки бинарного изображения фазовых структур был положен принцип маркировки кластеров Хошена и Копельмана [17], использующийся в теории переколяций. Каждой частице дисперсной фазы и каждому пикселу данной частицы присваивалась цифровая метка. Площадь S и периметр P частиц рассчитывали соответственно по числу пиксел в частице и числу пиксел, образующих ее границу. Указанные величины служили основой для расчета эквивалентного диаметра d_i и фактора формы F_i для каждой частицы

$$d_i = 3\sqrt{S/\pi} \quad (1)$$

$$F_i = \frac{P}{2\sqrt{\pi S}} \quad (2)$$

В результате обработки необходимого числа микрофотографий формировали массивы значений эквивалентных диаметров и факторов формы, на основании которых рассчитывали следующие параметры:

средний эквивалентный диаметр [18]

$$d = \sum_1^n (d_i/n) \quad (3)$$

(n – число частиц дисперсной фазы в массиве),

средний фактор формы

$$F = \sum_{i=1}^n (F_i/n), \quad (4)$$

удельную межфазную поверхность

$$s = (12FV)/d \quad (5)$$

(V – объемная доля дисперсной фазы);

среднее межчастичное расстояние

$$L = d(\sqrt[3]{0.71/V}-1), \quad (6)$$

дисперсию

$$Q = \frac{1}{-1+n} \sqrt{\sum_{i=1}^n (d - d_i)} \quad (7)$$

При помощи отдельной программы каждый из накопленных массивов данных может быть выражен в виде гистограммы (кривой) распределения. На рис. 4 изображены гистограммы распределения частиц дисперсной фазы по диаметрам в смесях БК–ПХП и ПММА–ПС, типичные микрофотографии морфологии которых обсуждались в предыдущих разделах работы.

Адекватность метода оценивали путем сравнения средних диаметров частиц, рассчитанных предлагаемым способом, с величинами d , определенными ручным способом (метод Делеса [18]), для двух рассматриваемых здесь смесей полимеров. Суть ручного метода [3] состоит в вырезании каждой из частиц по контуру и определении их диаметров методом взвешивания. Результаты сравнения значений d , полученных в шести независимых опытах каждой из серий, а также расхождение между ручным и автоматическим способами (последний столбец) приведены в таблице.

В заключение отметим, что для анализа фазовой морфологии одного объекта средней сложности при условии накопления информации не менее чем о 400 частицах требуется в среднем 1.5 ч.

Авторы благодарят П.В. Сурикова и В.Н. Лобанова (МИТХТ им. М.В. Ломоносова) за ценную помощь и советы при построении и настройке компьютерных программ, обеспечивающих функционирование предложенного метода.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Quantimet 720. Рекламный проспект фирмы "Imanso Corp".
- Мирошников Ю.П., Волошина Ю.П., Штер Й. // Механика композит. материалов. 1991. № 2. С. 341.
- Мирошников Ю.П., Козлова Г.С., Волошина Ю.Н. // Высокомолек. соед. Б. 1989. Т. 31. № 10. С. 767.
- Каминский А.Н., Хексель Л., Киселев В.Я. // Изв. вузов. Сер. химия и хим. технология. 1985. Т. 28. № 2. С. 77.
- Кулезнев В.Н. Смеси полимеров. М.: Химия, 1980.
- Малкин А.Я., Чалых А.Е. Диффузия и вязкость полимеров. М.: Химия, 1979.
- Чалых А.Е. Электронно-зондовый микронализ в исследовании полимеров. М.: Наука, 1990.
- Башкиров О.А., Щетинина Н.Н. // Тез. докл. 5 Совещ. по проблемам автоматизации анализа изображений микроструктур. М.: Изд-во АН СССР, 1977. С. 265.
- Агаджанян Ж.М., Горштейн В.П., Казанович Я.Б. // Тез. докл. 5 Совещ. по проблемам автоматизации анализа изображений микроструктур. М.: Изд-во АН СССР, 1977. С. 115.
- Fortelny I. // J. Appl. Polym. Sci. 1993. V. 48. № 8. P. 1731.
- Леньшина Л.К. // Тез. докл. 5 Совещ. по проблемам автоматизации анализа изображений микроструктур. М.: Изд-во АН СССР, 1977. С. 122.
- Мирошников Ю.П., Волошина Ю.Н., Зинукова Е.В. // Каучук и резина. 1991. № 3. С. 6.
- Hobbs S.Y., Dekkers M.E.J., Watkins V.N. // Polymer. 1988. V. 29. № 9. P. 1598.
- Справочник по теории вероятностей. М.: Наука, 1985.
- Климов А.С. Форматы графических файлов. М.: Диасофт Лтд., 1995.
- Четвериков Н.С. Сглаживание динамических рядов. М.: Наука, 1985.
- Харвей Г., Жан Т. Компьютерное моделирование в физике. М.: Мир, 1990.
- Салтыков С.А. Стереометрическая металлография. М.: Металлургия, 1970.

Computer-Aided Image Analysis for Studying the Morphology of Multiphase Polymer Blends

A. Letuchii*, L. Ya. Klepper**, and Yu. P. Miroshnikov*

* Moscow Academy of Fine Chemical Technology,
pr. Vernadskogo 86, Moscow, 117571 Russia

** Central Institute of Mathematical Economics, Russian Academy of Sciences,
pr. Nakhimova 47, Moscow, 117572 Russia

Abstract—An interactive method of the image processing and quantitative analysis for studying the phase structure of polymer blends and other systems with the aid of a scanner and a PC is proposed. Graphic dot files, obtained by scanning high-quality contrast photomicrographs of the objects containing no artifacts and foreign inclusions, were processed in a routine automatic regime, whereas low-contrast images characterized by an optical wedge, artifacts, and other defects were processed by operator. In particular, the identification of visually similar image areas belonging to the particles of dispersed phase and the matrix is a semi-automatic procedure. The computer-aided image analysis provides quantitative information on the standard morphological parameters such as the size distribution and the shape of particles of the dispersed phase, specific interfacial area, dispersion, etc. The technique proposed is applicable to multiphase heterogeneous systems; it offers a simple and universal method that can be realized virtually in any laboratory.