

文章编号: 1002-1582(2025)04-0491-06

基于RDCAN深度学习的三维共焦 拉曼光谱高分辨成像方法

齐亚昆, 徐德民, 崔晗, 邱丽荣, 赵维谦*

(北京理工大学 光电学院 “复杂环境智能感测技术” 工信部重点实验室, 北京 100081)

摘 要: 三维共焦拉曼光谱成像凭借独特的分子特异性和非破坏性原位分析能力, 在材料、生物医学等领域得到了广泛应用。然而, 其几何形貌分辨率不足的固有缺陷制约了更深层次的应用拓展。因此, 提出一种基于残差密集通道注意力网络(RDCAN)的超分辨率图谱成像方法, 实现三维共焦拉曼光谱图像到几何形貌的跨模态重建。首先设计端到端的深度学习网络, 以残差密集网络为基础, 充分融合局部与全局多尺度特征, 并引入通道注意力机制动态优化特征权重分配, 增强网络的特征提取能力; 其次, 利用自主搭建的激光差动共焦-拉曼光谱系统采集数据, 其中共焦拉曼模块采集的三维光谱数据作为网络输入, 差动共焦模块同步获取的几何形貌数据作为真值进行训练, 最终实现几何形貌的重建。实验结果表明, 重建结果的峰值信噪比达到27.4 dB, 结构相似度达到0.98, 与差动共焦显微镜测量结果接近。与传统方法相比, 方法无需额外硬件即可在传统三维共焦拉曼光谱成像基础上扩展高分辨几何成像能力, 实现光谱-几何形貌同源融合, 为解决其在几何形貌分辨率上的局限性提供了创新解决方案。

关 键 词: 光谱学; 拉曼成像; 超分辨率; 深度学习; RDCAN

中图分类号: TP394.1; TH691.9

文献标识码: A

3D Confocal Raman Spectroscopic High-Resolution imaging method based on RDCAN deep learning model

QI Yakun, XU Demin, CUI Han, QIU Lirong, ZHAO Weiqian*

(MIIT Key Laboratory of Complex-field Intelligent Exploration, School of Optics and Photonics,
Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China)

Abstract: Three-dimensional confocal Raman spectroscopic imaging is widely used in materials science and biomedicine due to its unique molecular selectivity and non-destructive, in-situ analytical capabilities. However, its inherent limitation of inadequate geometric resolution hinders the development of more advanced applications. In this study, a super-resolution mapping method that employs a Residual Dense Channel Attention Network (RDCAN) to transform 3D confocal Raman spectral images into geometric topography is proposed. An end-to-end deep learning model is designed based on a Residual Dense Network (RDN), which effectively integrates both local and global multi-scale features. The model incorporates a channel attention mechanism to dynamically optimize feature weight allocation, thereby enhancing feature extraction capability. A self-developed laser differential confocal Raman spectroscopy system is used for data acquisition. In this system, 3D

收稿日期: 2025-03-13; 收到修改稿日期: 2025-05-17

基金项目: 高分辨高灵敏激光差动共焦拉曼-LIBS光谱联用显微成像技术及仪器(2022YFC3300702); 高性能激光差动共焦拉曼光谱显微成像关键技术及系统研究(U22A6006)

作者简介: 齐亚昆(1998—), 男, 硕士研究生, 从事拉曼图像超分辨率研究。qqiyk2022@163.com

赵维谦(1966—), 男, 教授, 博士, 从事精密光电成像与检测、智能光电感测、激光制造监测、纳米测控系统研究。

* 通讯作者: zwwq669@126.com

spectral data obtained by the confocal Raman module serve as input to the network, while the geometric topography data captured by the differential confocal module serve as ground truth for training. The reconstruction of geometric topography is ultimately realized. Experimental results show that the reconstructed geometric topography achieves a peak signal-to-noise ratio (PSNR) of 27.4dB and a structural similarity index (SSIM) of 0.98, closely matching the measurements obtained by differential confocal microscopy. Compared with traditional methods, the proposed approach enhances high-resolution geometric imaging based on conventional 3D confocal Raman spectroscopy without requiring additional hardware. It also enables spectral-geometric homologous fusion, offering an innovative solution to overcome the limitations in geometric resolution.

Keywords: spectroscopy; Raman imaging; super-resolution; deep learning; RDCAN

0 引 言

拉曼成像技术基于拉曼散射效应,通过采集样品微区的光谱信息重构二维或三维图像,为揭示物质分子组成与微结构分布提供重要技术手段。三维共焦拉曼光谱成像(Three-Dimensional Confocal Raman Imaging, 3D-CRI)通过结合共聚焦成像技术与拉曼成像技术,可在三维空间内同步解析样品的化学成分及应变分布等多维信息,具有非接触、无标记、多参数同步检测等独特优势,在微观材料、生物细胞研究等领域得到了广泛应用^[1-3]。

然而,随着纳米尺度下成分-形貌关联需求的日益增长,该技术的局限逐渐显现:尽管3D-CRI可精确探测微区化学成分与应变分布,但几何形貌分辨率受限于光学衍射极限与信号采集效率(通常为微米或亚微米级),难以实现纳米尺度成分-几何形貌的精确空间匹配。现有解决方案采用多仪器联用技术,通过将拉曼光谱与原子力显微镜(AFM)、扫描电子显微镜(SEM)及扫描近场光学显微镜(SNOM)等联用构建复合系统,可实现光谱-几何形貌的纳米级对应^[4-8]。但联用技术存在分辨率不匹配、样品适应性冲突、信号采集效率低及系统集成复杂性等问题。激光差动共焦拉曼光谱技术通过融合瑞利光与拉曼散射光可同步获取光谱和形貌信息,横向分辨率达220nm,轴向对焦精度为1nm^[9-10],但该技术仍需额外光路来探测形貌信息,光路要求严格,系统结构复杂,维护成本高。

近年来,深度学习在高光谱图像(Hyperspectral Image, HSI)解析中展现出强大的特征挖掘能力,为拉曼光谱的几何形貌重建提供了新思路^[11-19]。在特征增强方面,SSAN模型通过双向RNN-CNN混合架构和注意力机制,实现了99%以上的地物分类精度^[12];在多模态融合方面,Zheng等改进的3D-CNN模型通过光谱-通道-空间三重注意力机制和跨层特征融合策略,在GF-5卫

星HSI中精准区分植被与建筑轮廓^[15];在图像重建方面,HSI-IPGAN利用对抗学习恢复纹理细节^[17],PDE-Net通过概率驱动的特征嵌入和迭代优化提升超分辨率精度^[18]。值得注意的是,三维共焦拉曼光谱作为具有层析特性的高维数据,其空间拓扑信息与HSI相似且信噪比更低,但由于分辨率限制,难以直接重构几何形貌,而上述研究表明:深度学习可通过解析光谱-空间联合特征突破物理分辨率限制,为拉曼形貌重建提供了可行路径。

基于此,本文提出一种基于残差密集通道注意力网络(Residual Dense Channel Attention Network, RDCAN)的超分辨率共焦拉曼图谱成像方法,用于从三维共焦拉曼光谱图像中重建高精度几何形貌。首先,该方法在残差密集网络(Residual Dense Network, RDN)中嵌入通道注意力模块优化特征权重分配,增强网络模型的特征提取能力;其次,利用自主搭建的激光差动共焦-拉曼光谱系统同步采集三维拉曼数据和几何形貌图,作为配对数据集,对网络模型进行学习训练。实验表明,该方法重建结果的峰值信噪比和结构相似度分别达到27.4dB和0.98,重建的几何形貌图接近差动共焦显微镜的测量结果。与依赖AFM/SEM联用的现有技术相比,本研究无需额外的形貌检测模块即可获取高分辨率几何形貌与化学信息,并实现光谱-几何形貌同源融合,为突破3D-CRI的几何分辨率极限提供了创新解决方案。

1 方 法

1.1 通道注意力机制

注意力机制是提升图像超分辨率性能的常用方法,通过赋予不同特征差异化权重,有效提升模型的表达能力。本研究采用RCAN网络中的通道注意力机制(Channel Attention, CA),其在图像和光谱图像超分辨率中均取得了优异效果^[20, 21]。如图1所示,CA首先对输入特征 $X \in \mathbb{R}^{C \times D \times H \times W}$ 在空间维度(D, H, W)进行全局平均池化,将 X 压缩为通道描述向量 $z \in \mathbb{R}^{C \times 1 \times 1 \times 1}$ 。然后经过两层

$1 \times 1 \times 1$ 卷积构成的瓶颈结构: 第一层卷积核数为 $C/8$, ReLU 函数激活, 实现通道维度的压缩与非线性的引入。第二层卷积的通道数恢复为 C , Sigmoid 激活生成通道权重 $W_c \in \mathbb{R}^{C \times 1 \times 1 \times 1}$ 。瓶颈结构能够在减少参数数量的同时, 强制模型学习通道间的关联信息。最终输入特征图按照通道权重进行逐通道乘法, 实现特征的动态校准。CA 在保持网络轻量化的同时, 有效提升了模型性能^[17]。

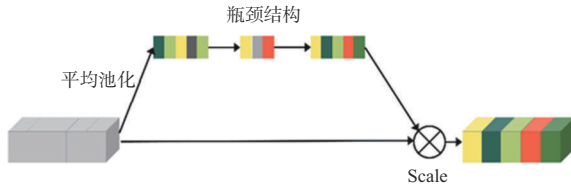


图1 通道注意力机制原理图

1.2 残差密集通道注意力网络

RDN 网络由 Yulun Zhang 等在 2018 年提出, 旨在通过多层特征复用架构提升图像超分辨率的性能^[22]。其核心为残差密集块 (Residual Dense Block, RDB), 每个 RDB 内部通过密集连接的卷积层构建局部特征金字塔, 并利用残差连接实现全局特征融合, 这种设计有效增强了信息流动和特征复用, 在多个基准数据集上取得了优异的效果。

RDCAN 在 RDN 的基础上进一步改进, 在 RDB 中嵌入 CA 优化特征权重分配, 形成 RDB-CA 单元, 进而构建整体网络。如图 2 所示, RDB-CA 模块由四部分组成: (1) 密集连接层, 包含 L (超参数) 个串联的 Conv - BatchNorm - ReLU 结构, 卷积核尺寸为 $3 \times 3 \times 3$, 输出通道数由 r (超参数) 控制。每层的输入为原始特征与前面所有层输出的拼接, 提取多层次特征信息, 对输入 $X \in \mathbb{R}^{C \times D \times H \times W}$, 输出的通道数为 $C + rL$ 。(2) 局部特征融合, 使用 $1 \times 1 \times 1$ 卷积对上述特征进行筛选融合, 将通道数调整为 C , 以便与后续残差分支匹配; (3) CA 模块, 通过平均池化和瓶颈结构生成通道注意力权重, 放缩各通道, 增强关键特征。(4) 局部残差连接, 将 CA 加权后的特征与输入相加, 既增强网络的表达能力, 又保证梯度的稳定传播。

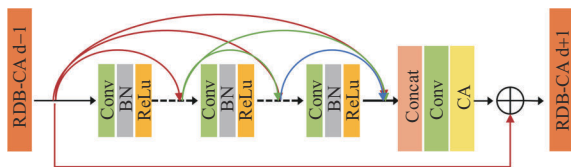


图2 RDB-CA 结构图

如图 3 所示, 主干网络包括三部分: (1) 浅层特征提取, $3 \times 3 \times 3$ 卷积层构建初始特征空间。(2) 深度特征挖掘与融合, 包含 N (超参数) 个

RDB-CA 模块, 用于捕获深层特征, 而后通过 $1 \times 1 \times 1$ 卷积整合所有特征信息。(3) 形貌重建, 利用卷积层、池化层以及 Squeeze 函数重建几何形貌图 $Y \in \mathbb{R}^{H \times W}$ 。

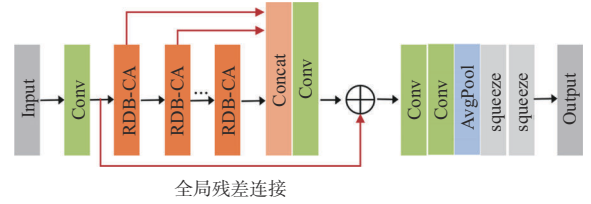


图3 RDCAN网络模型结构图

2 实验

2.1 数据采集平台

本实验采用自主搭建的激光差动共焦-拉曼光谱系统, 该系统由差动共焦探测模块和拉曼光谱探测模块构成, 可同步获取样品的三维拉曼光谱数据和几何形貌图^[9], 光路结构如图 4 (a) 所示。532nm 半导体激光 (Samba 150, Cobolt) 经准直扩束后, 由物镜 ($100 \times$, $NA=0.95$, MPlanApoN, Olympus) 聚焦至样品。样品激发的反射光和拉曼散射光沿来时光路返回, 被物镜收集后, 由陷波滤光片 (LPD01-532RU-25, Semrock, USA) 分离。反射光进入差动共焦探测模块, 经过分光棱镜 BS2 分束至前焦探测光路 (L1、PH1 和 PMT1) 和后焦探测光路 (L2、PH2 和 PMT2), 分别检测前焦光强 I_f 和后焦光强 I_b , 经 $I_f - I_b$ 差分处理得到具有过零特性的轴向响应曲线 I_{DC} , 从而实现高精度的几何形貌探测。而透过滤光片的拉曼散射光经共焦针孔进入光谱仪 (LRS-5, Gangdong Tech, 光谱分辨率为 0.8 cm^{-1}), 采集光谱信号 (积分时间为 1s)。

扫描采用层扫模式, 即物镜驱动器依次沿 Z 方向移动, 在每个 Z 层的 XY 平面上按行逐点扫描, 数据采集卡实时记录三维位置 (XYZ) 及前后焦光强, 并同步触发光谱仪采集拉曼光谱。扫描结束后, 将各点光谱按采集顺序重构成三维共焦拉曼光谱数据 ($X \times Y \times Z \times W$, 其中 W 为光谱长度), 峰值强度三维渲染如图 4 (b) 所示, 单点光谱曲线如图 4 (c) 所示。对每个 XY 位置的轴向 I_f 和 I_b 进行差动处理, 并在线性区间拟合, 确定焦点的轴向位置, 生成几何形貌图 ($X \times Y$), 如图 4 (d) 所示。由于三维共焦拉曼光谱和几何形貌同步采集, 保证了二者在 XY 区域的像素级对齐, 匹配误差主要由 PI 公司的 P-542 压电陶瓷扫描台 (闭环分

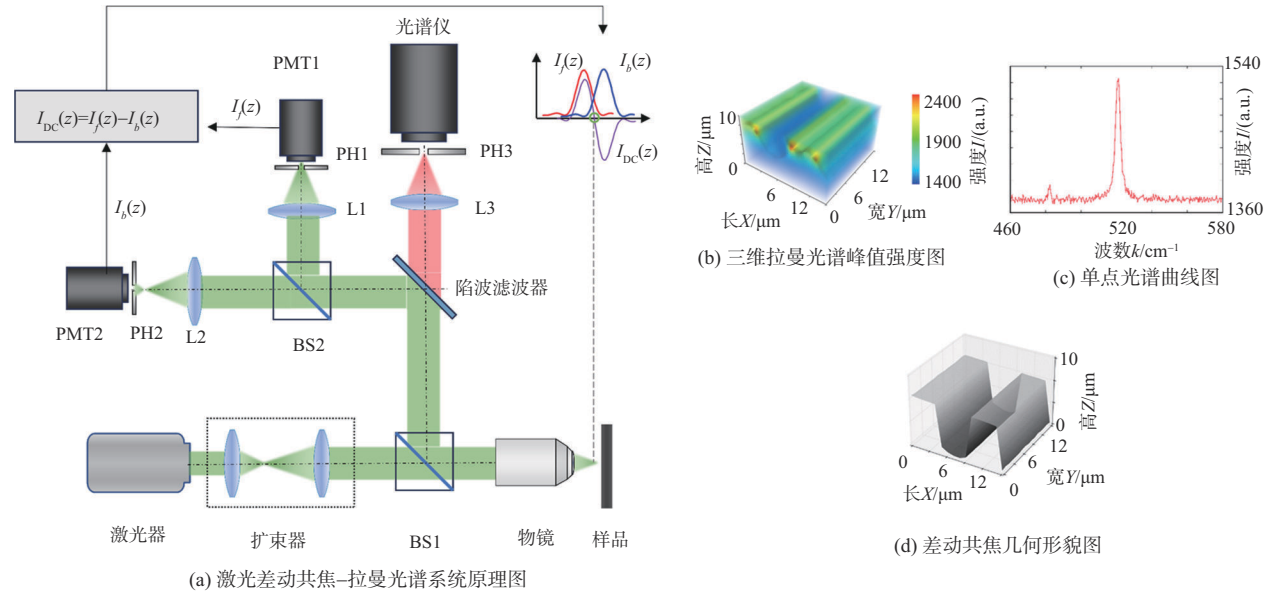


图 4 激光差动共焦-拉曼光谱系统

分辨率为 0.4nm，重复性为 $\pm 5\text{nm}$ ，线性度 0.03%）决定，满足该实验的对齐精度要求。

2.2 数据集构建

本文选用 AppNano 公司的 Step Height Standard 系列光栅作为测试对象。光栅结构具有可量化的几何参数（高度、周期、占空比）及其台阶状形貌广泛存在于半导体器件、微纳光学等领域，具有典型代表性。实验样品涵盖三种高度（10 μm 、5 μm 、500nm）与四种周期（5 μm 、10 μm 、20 μm 、50 μm ），通过多种参数组合系统验证方法的重建能力。

利用激光差动共焦-拉曼光谱系统，设置不同的横向和轴向扫描步进对样品进行扫描，同步获取不同尺寸的三维共焦拉曼光谱图像及对应区域的几何形貌图像，共获得 160 组三维共焦拉曼光谱数据样本，采集总时长约 500 小时。同时，为了减少仪器设备和环境因素的影响，本研究采用去除宇宙射线、去噪、滤波、归一化等方法对光谱进行预处理，并调整数据格式为 $C \times D \times H \times W$ ，其中 C 为光谱维度， D 为深度， H 为高度， W 为宽度。根据扫描参数，对几何形貌图进行归一化处理，得到归一化后的相对高度。针对样本数量不足的问题，采用轴向切片平移、镜像、旋转及随机裁剪进行扩充等方法扩充数据集，最终达到 600 组数据，并按照 8:2 划分为训练集和测试集。

2.3 训练环境及参数

本研究的实验环境为 Windows 10，采用 Pytorch 框架实现网络模型，在 NVIDIA GeForce GTX 1050 Ti GPU 上训练。初始学习率为 1×10^{-5} ，

损失函数为 L1Loss，优化器为 Adam，训练批次大小为 16，训练轮数为 1000。根据既往的文献经验以及实际的训练效果，网络模型超参数的设置如下：RDB 数量 $N=8$ ，每个 RDB 中卷积层数 $L=4$ ，生长率 $r=32$ ，参数量达到 359 万，该模型对算力资源需求不高，具有较强的实用性。

2.4 评价指标

为了全面、准确地评估模型的重建效果，本文将平均误差损失（MSE）、峰值信噪比（PSNR）和结构相似度（SSIM）作为评价指标，从全局误差、信号保真度和结构相似性三个角度进行量化评估。MSE 定义为重建图像与真值图像像素值差异的平方均值，数学公式为

$$\text{MSE} = \frac{1}{WH} \sum_{x=1}^W \sum_{y=1}^H [I(x,y) - K(x,y)]^2 \quad (1)$$

式中 I ， K 表示重建的几何形貌图与真值图像。MSE 值越小，说明两幅图像在像素上越接近。但 MSE 对异常值的过度敏感可能放大局部误差。PSNR 在 MSE 的基础上引入最大像素值 MAX_I 对误差进行归一化，公式为

$$\text{PSNR} = 10 \cdot \log_{10} \left(\frac{\text{MAX}_I^2}{\text{MSE}(I,K)} \right) \quad (2)$$

PSNR 的单位为分贝（dB），数值越高表明重建质量越接近真值图像。PSNR 物理意义明确且计算便捷，可快速量化重建结果的信号保真度，但在纹理或结构复杂区域可能与人眼主观感知存在偏差。为弥补 MSE 和 PSNR 在结构信息评估上的不足，SSIM 从亮度、对比度和结构三方面综合度量图像的相似性，公式为

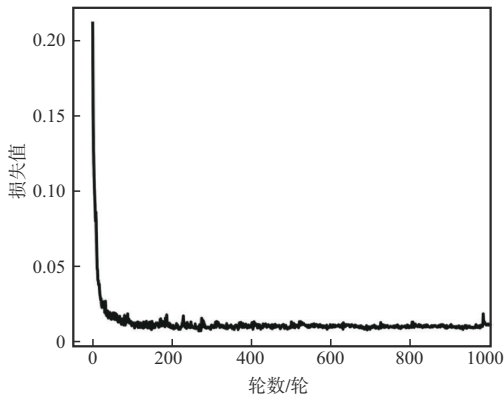
$$\text{SSIM} = \frac{(2\mu_x\mu_y + c_1)(2\sigma_{xy} + c_2)}{(\mu_x^2 + \mu_y^2 + c_1)(\sigma_x^2 + \sigma_y^2 + c_2)} \quad (3)$$

式中 μ 、 σ 和 σ_{xy} 分别表示均值、方差和协方差, c_1 和 c_2 是用来维持稳定的常数。SSIM数值范围为0到1, 越接近1表示结构相似性越高。SSIM更贴合人类视觉系统, 与主观质量评价关联性较强, 尤其在边缘和纹理保持上表现优异。

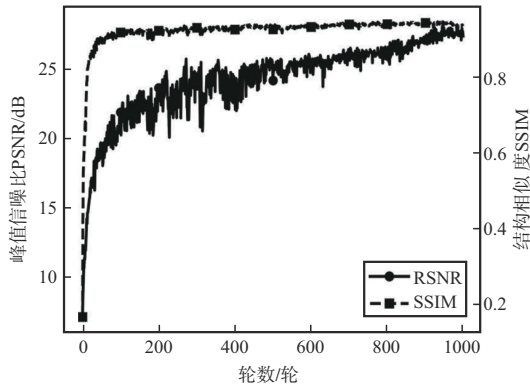
3 实验结果与分析

3.1 训练结果

随着模型的不断训练, 损失函数和峰值信噪比趋于收敛, 如图5所示。



(a) 模型损失值变化趋势图



(b) 峰值信噪比和结构相似度变化趋势图

图5 网络模型评价指标变化趋势图

在最终测试集中, MSE稳定在0.006, PSNR达到27.4dB, SSIM为0.98, 表明重建图像具有高信噪比和极低噪声, 且在结构和纹理细节上与真实几何形貌高度一致。这些指标充分证明了该方法在提升3D-CRI几何形貌分辨率方面的有效性。

3.2 分辨率测试

本文选用标准台阶样品STEP-OX-0.5进行分辨率验证。样品高度为0.5 μm , 基底材质为Si, 台阶材质为 SiO_2 。由于在台阶的几何成像过程中, 系统的点扩散函数与测量结果中的台阶边沿宽度密切相关, 因此将台阶上升沿10~90%范围对应

的横向宽度作为几何成像横向分辨率的测试依据^[23,24]。在实验中, 以横向50nm、轴向100nm步进对样品台阶的上升沿区域进行扫描, 光谱采集范围为400~800 cm^{-1} , 积分时间1s, 获得三维共焦拉曼光谱数据, 尺寸为64 $\times$ 64 $\times$ 10 $\times$ 1260, 对数据进行预处理后, 输入RDCAN网络模型, 得到超分辨重建的几何形貌如图6(a)所示。差动共焦显微测量结果如图6(b)所示。

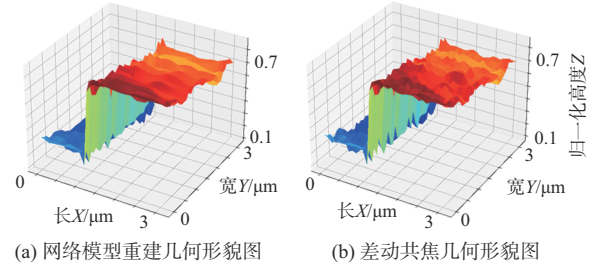


图6 分辨率测试结果

如图7所示, 在10个不同位置分别提取横截面曲线, 并计算上升沿宽度的平均值与标准差。RDCAN重建结果的宽度为 $d_{\text{RDCAN}} = 0.2413\mu\text{m} \pm 0.0577\mu\text{m}$, 差动共焦的测量值为 $d_{\text{DCM}} = 0.2383\mu\text{m} \pm 0.0601\mu\text{m}$ 。两者相差仅1.03%, 形状基本一致, 表明RDCAN网络能够精准重建几何形貌, 精度接近差动共焦显微镜。

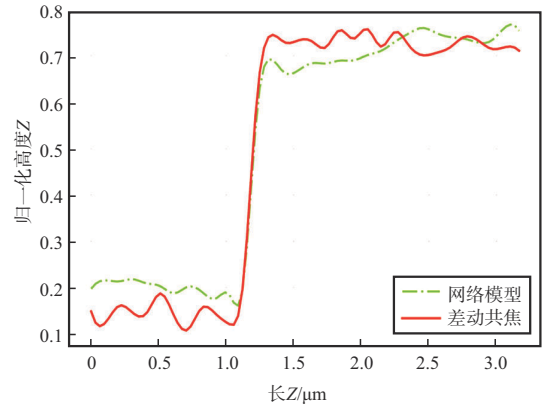


图7 分辨率测试截面图

3.3 图谱融合成像测试

为验证方法在光谱-形貌融合成像中的性能, 本文选用飞秒激光加工的单晶硅光栅样品。飞秒加工采用ErFemto-780 Pro激光器(波长780nm、脉冲宽度140fs、重复频率80MHz), 制备出周期0.5 μm 的光栅结构。实验中, 横向与轴向步距分别为20nm和80nm, 扫描尺寸为32 $\times$ 32 $\times$ 10, 光谱范围覆盖480~560 cm^{-1} , 积分时间1s, 最终获取32 $\times$ 32 $\times$ 10 $\times$ 252的三维共焦拉曼光谱数据。对光谱数据进行预处理后选取520 cm^{-1} 谱峰强度三维渲染, 结果如图8所示, 其中Z轴表示归一化高度。

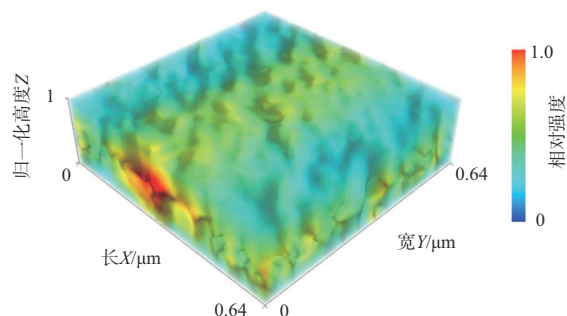


图 8 三维拉曼光谱峰值强度图

将该光谱数据输入RDCAN网络，得到超分辨率重建的几何形貌图，如图 9 所示。

将三维光谱渲染图和重建的几何形貌图叠加，绘制在同一图像中，得到三维图谱融合图像，如图 10 (a) 所示。基于三次样条插值算法，从三维光谱数据中计算得到重建形貌位置的峰值强度，绘制几何表面光谱强度分布，如图 10 (b)

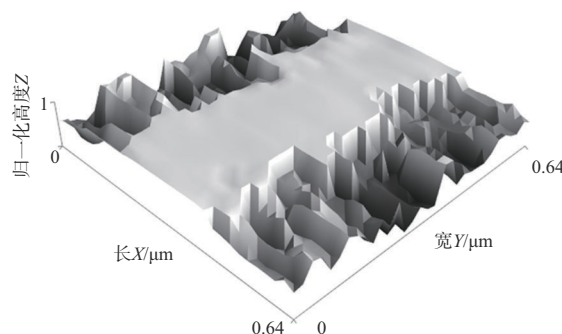


图 9 RDCAN 模型重建的几何形貌图

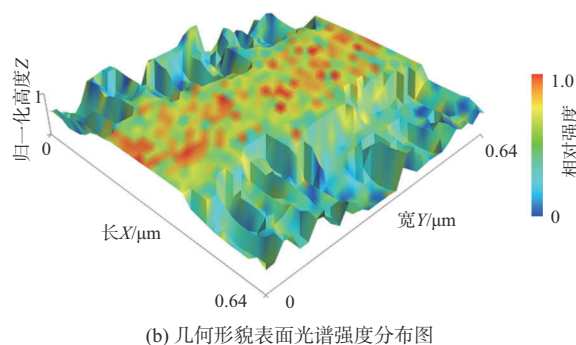
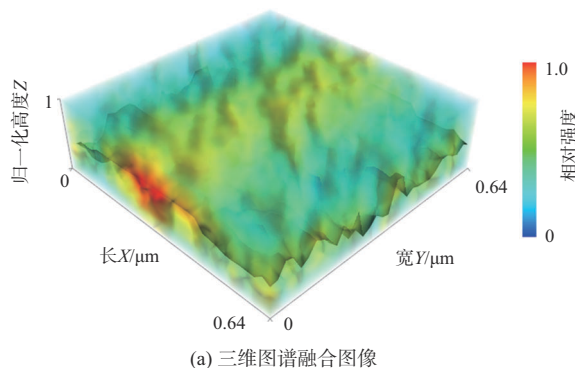


图 10 图谱融合结果

4 结 论

本文提出了一种基于RDCAN的超分辨率图谱成像方法，通过端到端学习三维共焦拉曼光谱与几何形貌的非线性映射关系，实现了3D-CRI技术中的几何形貌重建与光谱-几何形貌的同源融合。实验结果表明，该方法重建形貌的PSNR达到27.4dB，SSIM达到0.98，与差动共焦显微镜的测量结果高度一致。相较于传统方法，该方法无需额外硬件即可在3D-CRI基础上扩展高分辨几何成像，实现化学成分与微观结构的联合表征，在生物医药（如细胞与组织的化学-形貌成像）及材料科学（如纳米材料与复合材料的原位分析）等前沿领域展现出广阔的应用前景。

参考文献：

[1] Pezzotti G, Higashino M, Tsuji K, et al. Non-destructive three-dimensional raman analysis of domain orientation in barium titanate single-crystal[J]. Journal of the European Ceramic Society, 2010, 30(2):199—204.

[2] Høgetset H, Horgan C C, Armstrong J P K, et al. In vivo bio-molecular imaging of zebrafish embryos using confocal raman

spectroscopy[J]. Nature Communications, 2020, 11(1):6172.

[3] Chen M, Wang J, Li D, et al. High-speed and wide-field 3D raman imaging using flower-like gap-enhanced raman tags[J]. Applied Physics Letters, 2024, 124(12):123701.

[4] Pilarczyk M, Rygula A, Kaczor A, et al. A novel approach to investigate vascular wall in 3D: Combined Raman spectroscopy and atomic force microscopy for aorta en face imaging[J]. Vibrational Spectroscopy, 2014, 75:39—44.

[5] Verma P. Tip-enhanced raman spectroscopy: Technique and recent advances[J]. Chemical Reviews, 2017, 117(9):6447—6466.

[6] Pei W, Hu R, Liu H, et al. Advanced raman spectroscopy for nanoplastics analysis: Progress and perspective[J]. TrAC Trends in Analytical Chemistry, 2023, 166:117188.

[7] Wille G, Lahondere D, Schmidt U, et al. Coupling SEM-EDS and confocal raman-in-SEM imaging: A new method for identification and 3D morphology of asbestos-like fibers in a mineral matrix[J]. Journal of Hazardous Materials, 2019, 374:447—458.

[8] Sk M H, Agrawal S, Casford M T L, et al. Contrast inversion of ferrite and pearlite in a sweet corrosion environment[J]. Applied Surface Science, 2023, 635:157744.

[9] Cui H, Wang Y, Qiu L, et al. Synchronous nanoscale topographic and chemical mapping by differential-confocal controlled raman microscopy[J]. Photonics Research, 2020, 8(9): 09001441.

(下转第 503 页)