

基于背散射电子-X 射线能谱图像智能分析的胶凝材料微观多模态多视图表征

李粒琰¹, 王相权¹, 姚羿舟², 毛丽璇³, 杨 健⁴

(1. 昆明理工大学建筑工程学院土木工程系, 昆明 650500; 2. 西安建筑科技大学土木工程学院, 西安 710055; 3. 厦门理工学院土木工程与建筑学院, 福建 厦门 361024; 4. 上海交通大学船舶海洋与建筑工程学院, 上海 200240)

摘 要: 背散射电子(BSE)与能量色散 X 射线谱(EDS)图像分析技术凭借其出色的二维空间分辨能力, 已成为表征土木工程材料微观结构的重要技术手段。本工作提出一种标准化的图像预处理策略, 通过整合 BSE 图像和同视场的定性定量 EDS 元素面谱, 建立以超像素为基本分析单元的多模态数据集, 有效克服孔隙存在及特征 X 射线与样品相互作用体积过大对物相识别的影响。结合降维和聚类算法, 开发可解释的 BSE-EDS 图像分析模型, 实现水泥矿渣复合胶凝体系物相组成的自动化分类。基于 Glue 平台构建多视图交互分析技术, 实现化学元素特征、物相含量分布和离子迁移路径的可视化、同步、联动表征。基于 PHATE(Potential of heat-diffusion for affinity-based trajectory embedding)图像构建物相网络拓扑图, 通过节点-连接拓扑关系量化物相演化动态特征。最终形成以 EDS 图像为核心、BSE 图像为辅助的智能分析范式, 实现化学模态(元素组成、物相类别)与空间模态(孔隙分布、物相分布)的协同定量表征, 达成“单次独立微观表征-多模态特征融合分析”的技术愿景, 为胶凝体系反应机理研究及微观结构动态演化分析提供较为综合全面的技术支撑。

关键词: 胶凝材料; 背散射电子图像; 能谱图像; 微观表征; 图像处理

中图分类号: TQ177 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2025)08-2362-12

网络出版时间: 2025-05-29



自 Karen Scrivener 教授首次基于背散射电子(BSE)图像灰度阈值分析硬化水泥浆体微观结构以来^[1], BSE 图像定量分析已逐渐成为土木工程材料微观表征的重要手段, 广泛应用于混凝土界面过渡区分析、胶凝材料反应程度量化等^[2-3]。随着大面积硅漂移能谱探测器的快速发展, 特征 X 射线的采集效率大幅提升。基于能量色散 X 射线谱(EDS)图像的定性或定量分析逐渐成为表征复杂胶凝材料物相组成和关键物相空间分布的新范式^[4-5]。

国内外学者针对土木工程胶凝材料提出了一系列定量 BSE 图像分析方法(QBSE)和定量 EDS 图像分析方法(QEDS)。主流 QBSE 方法包括拐点法^[6]、Overflow 法^[7]和高斯混合模型(GMM)法^[8]等。其中, 拐点法通过分析 BSE 图像灰度频度分布直方图特征峰的峰谷和拐点值确定孔隙及物相阈值, Overflow 法则以 BSE 图像灰度累计分布直方图拐点的灰度值作为相阈值, GMM 法假设各相灰度值服

从正态分布, 将直方图视为各相正态分布的线性叠加。前 2 种方法依赖灰度统计分布曲线的形态特征进行阈值划分, 主观性较强。而 GMM 方法通过概率模型灵活确定相阈值。尽管 BSE 图像的高分辨率使其能够精准捕捉胶凝体系的孔隙分布特征, 但基于单一的灰度阈值划分难以准确区分灰度范围存在重叠的物相, 且易受亮度和对比度等主观参数调整的影响^[9]。为此, 有学者引入深度学习算法, 如卷积神经网络(CNN), 提取 BSE 图像的高维特征以提高物相识别精度和自动化水平^[10]。

QEDS 方法根据元素特征实现物相识别。然而, 特征 X 射线与样品的相互作用体积显著大于 BSE 与样品的相互作用体积^[11], 导致 EDS 元素面谱的分辨率低于 BSE 图像。EDS 元素面谱分为定性元素面谱和定量元素面谱 2 种, 定性元素面谱的像素值反映的是该点处的元素信号强度, 其值在 0~255 变化。定量元素面谱的像素值反映的是该点处

收稿日期: 2025-02-04。 修订日期: 2025-02-26。

基金项目: 国家自然科学基金(52408294)。

第一作者: 李粒琰(1996-), 女, 博士, 讲师。

Received date: 2025-02-04. Revised date: 2025-02-26.

First author: LI Lihui (1996-), female, Ph.D., Lecturer.

E-mail: lilihui@kust.edu.cn

的元素相对含量，其值在 0%~100%变化。为提升 EDS 元素面谱信噪比，单视场定量元素面谱的采集耗时长达半小时至数小时^[12-13]。常见的 QEDS 方法包括三元密度图法、edxia 和基于机器学习聚类算法的一系列方法。三元密度图法通过提取定量元素面谱的像素值，构建基于 Ca-Al-Si 的元素分布密度图，结合专家知识进行区域划分以实现物相的识别和量化^[12]。Edxia 利用简单线性迭代聚类(SLIC)算法对元素面谱进行超像素划分，以超像素质心位置处的元素含量作为超像素的表征值，通过对元素比例区域进行划分以建立元素与物相间的映射关系，最终实现物相含量和分布的量化表征^[14]。超像素算法的使用不仅降低了分析计算量，且生成的超像素大小与特征 X 射线和样品的相互作用体积相匹配，从而实现了表征精度与分析精度的对齐。近年来，陆续有学者利用 SVM-MRF(Support vector machine and Markov random field)、K-means、GMM 和 PHATE-GMM(Potential of heat-diffusion for affinity-based trajectory embedding and GMM)等算法对定性或定量元素面谱进行聚类分析，聚类对象涵盖像素表示的元素相对含量^[15-16]、颜色特征^[17-19]和超像素表示的元素相对含量^[20-22]及比例特征^[23]等，有力推动了 QEDS 方法在土木工程复杂胶凝体系中的精细化应用。

综上所述，尽管现有 QBSE 与 QEDS 方法已形成多样化的技术体系，但二者在数据协同层面仍存在挑战。一方面缺乏统一和通用的 BSE 和 EDS 数据整合处理流程。另一方面，现有分析框架多局限于单一特征解析，对胶凝材料微观演化所涉及的多模态特征的识别和运用仍十分有限。构建通用化的 BSE-EDS 图像智能分析框架，拓宽 QBSE 和 QEDS 在胶凝体系微观分析方面的下游应用，对揭示胶凝体系反应机理和动态演变规律，拓展多模态表征技术应用边界具有重要价值。

本工作以水泥矿渣胶凝材料微观表征为例，首

先介绍了一种实用性好的 BSE-EDS 图像预处理策略，构建以超像素为基本分析单位的数据表，接着利用 PHATE-GMM 实现物相的自动化和可解释化识别，此外基于 Glue 平台开展水泥矿渣胶凝体系多模态多视图同步交互分析，以检验物相识别精确度并揭示物相间的协同演化机制，最后展示了 BSE-EDS 图像分析在土木工程胶凝材料微观表征方面常见的下游应用案例。

1 实验

1.1 原材料

所使用的原材料为硅酸盐水泥和粒化高炉矿渣(GGBFS)的化学成分见表 1。图 1 为水泥和矿渣的粒径分布。定量 X 射线衍射技术(QXRD)测试结果显示水泥中各物相质量分数占比分别为 C₂S 18.5%，C₃S 58.8%，C₃A 12.6%，C₄AF 1.9%，石膏 3.3%，烧失量 4.9%。矿粉中无定形物相质量分数达 99%。为将 BSE-EDS 图像分析方法与 QXRD 结果进行比较分析，将各物相密度假定为硅酸二钙/硅酸三钙 (C₂S/C₃S) 3.23 g/cm³，铝酸三钙/铁铝酸四钙(C₃A/C₄AF) 3.12 g/cm³，石膏 2.32 g/cm³，GGBFS 2.20 g/cm³。

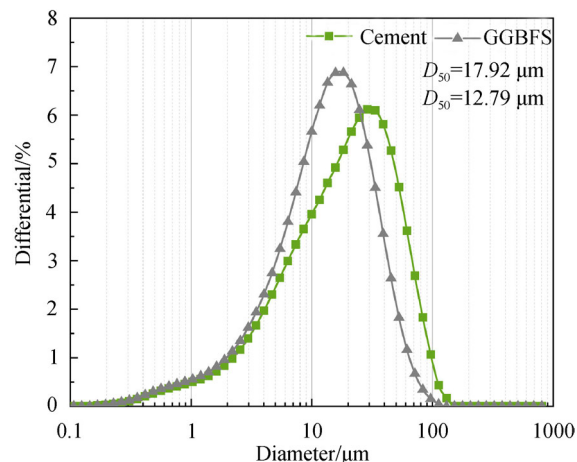


图 1 水泥和矿渣的粒径分布

Fig. 1 Particle size distribution of the cement and GGBFS

表 1 水泥和矿渣的化学成分(质量分数)

Table 1 Chemical composition (mass fraction) of cement and GGBFS samples										w/%
Raw material	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	TiO ₂	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	MnO	SO ₃
Cement	14.67	4.03	4.18	65.88	0.32	3.67	1.34	1.22	0.11	3.32
GGBFS	27.05	15.38	0.31	39.95	1.26	10.69	1.56	0.37	0.42	2.02

1.2 样品制备

矿渣占胶凝材料总质量的 30%，水胶比为 0.4，养护龄期设置为 0(粉末状态)、7 d 和 14 d。将矿渣

与水泥按比例混合均匀作为原材料样品，将矿渣、水泥和水按比例倒入净浆搅拌机并以 120 r/min 速度搅拌 5 min 制备矿渣-水泥复合净浆。将完成搅拌的

净浆倒入模具, 手动轻微震荡 30 s 去除净浆中的气泡, 室温养护 24 h 后脱模, 后放入标准养护室[温度 $(20 \pm 2) ^\circ\text{C}$, 湿度 $\geq 95\%$]至规定龄期。养护结束后, 从净浆相对中心部位取样, 样品尺寸一般为 $10\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$, 放置于异丙醇溶液 7 d, 在浸泡 12、24、48、72 h 和 120 h 后更换异丙醇溶液。随后, 样品在 $40 ^\circ\text{C}$ 干燥箱中充分干燥, 直至重量不再改变, 干燥完成的样品放入真空保存箱中, 防止碳化 and 灰尘污染。

用低黏度环氧树脂对样品进行真空浸渍镶嵌以增强 BSE 图像孔隙衬度和避免磨抛破坏样品微观结构。粉末样品为水泥和矿渣干粉的混合物, 在模具底部薄铺一层, 然后倒入环氧树脂, 并使用胶头滴管进行适当引流。依次使用 320、500、1200 目和 2400 目砂纸粗抛, 再使用 9.00 、 3.00 、 $1.00\text{ }\mu\text{m}$ 和 $0.25\text{ }\mu\text{m}$ 的金刚石悬浮液进行逐步抛光。当抛光粒径为 $9\text{ }\mu\text{m}$ 时, 抛光时间为 5 min, 施加压力为 12 N; 当抛光粒径为 $3\text{ }\mu\text{m}$ 时, 抛光时间为 15 min, 施加压力为 15 N; 当抛光粒径为 $1\text{ }\mu\text{m}$ 时, 抛光时间为 30 min, 施加压力为 20 N; 当抛光粒径为 $0.25\text{ }\mu\text{m}$ 时, 抛光时间为 3 h, 施加压力为 25 N。

1.3 BSE-EDS 图像智能分析流程

1.3.1 图像获取 样品喷金后采用国仪量子 (CIQTEK, SEM5000Pro) 场发射扫描电子显微镜, 选择背散射模式在真空环境下获得 BSE 图像, 加速电压设置为 15 kV, 工作距离为 11 mm。BSE 和 EDS 图像分辨率均为 $1024\text{ pixels} \times 704\text{ pixels}$, 其中粉末样品图像视场范围为 $137.22\text{ }\mu\text{m} \times 94.34\text{ }\mu\text{m}$, 水化样

品图像视场范围为 $68.61\text{ }\mu\text{m} \times 47.17\text{ }\mu\text{m}$ 。采用牛津仪器 Xplore 30 能谱仪进行 EDS 面谱采集。每帧扫描时长为 $256\text{ }\mu\text{s/pixel}$, 处理时间为 4, 通道数量为 1024, 收集帧数为 4。每秒特征 X 射线输出计数率稳定在 $80\,000 \sim 100\,000\text{ cps}$ 之间, 死时间低于 20%。所采集的元素面谱包括硅(Si)、铝(Al)、钙(Ca)、镁(Mg)、铁(Fe)、硫(S)和氧(O), 首先保存定性元素面谱图像, 随后利用 Aztec 内置的“Quantmap”功能进行定量处理, 输出原子百分比表示的定量元素面谱文件。

1.3.2 BSE-EDS 图像前处理 由于特征 X 射线与样品的相互作用体积较大, 使得所形成的定性或定量元素面谱的图像分辨率较低。为提高物相元素特征提取的准确程度, 利用 BSE 图像作为引导图像, 通过引导滤波将 BSE 图像结构信息融入同视场区域的元素面谱, 生成超分辨的 EDS 元素面谱^[24]。从图 2 可以看出, 处理前的元素面谱信号分布相对稀疏离散, 边界特征模糊, 经过引导滤波处理后, 元素面谱信噪比明显提高, 物相边界特征更加清晰。鉴于定性元素面谱的视觉直观性, 本工作建立适宜的元素-色彩映射关系合成彩色 EDS 图像用于超像素划分, 以确定物相识别和分类的最小分析单元。针对原材料粉末样品, 利用 ImageJ 内置的 IsoData 算法对定性 Ca、Si、Al、Fe、Mg 和 S 元素面谱分别进行二值化处理, 并将所有二值化图像进行图像并运算, 将其作为原材料的物相掩模, 以合理排除环氧树脂对物相识别的干扰。针对水化样品, 利用拐点法对样品 BSE 图像进行灰度阈值划

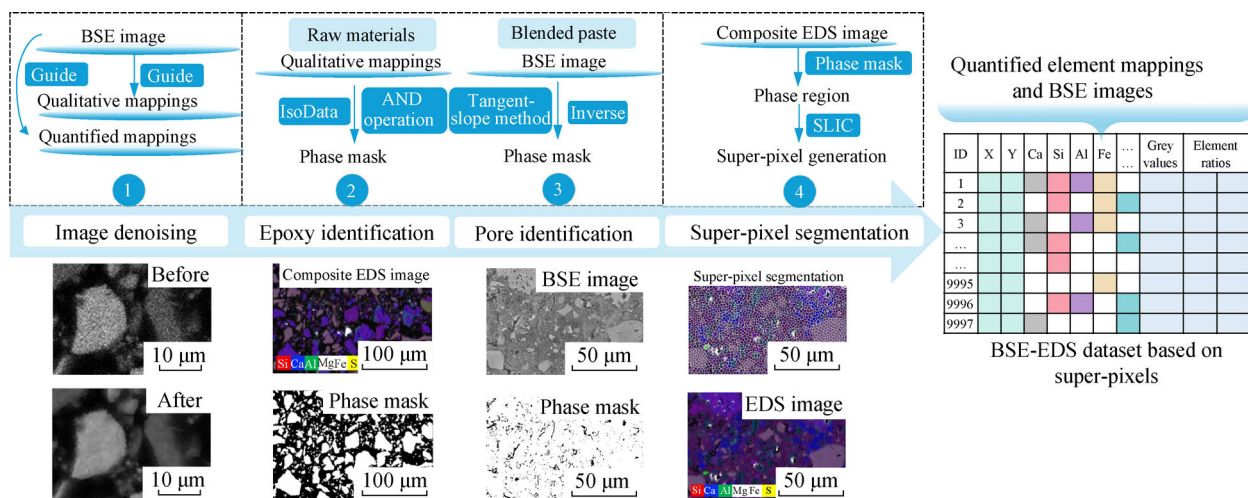


图 2 BSE-EDS 图像前处理流程图

Fig. 2 Schematic diagram of pre-processing for BSE and EDS images

分以确定复合净浆中孔隙分布情况^[25]，并将孔隙掩模取反作为物相掩模，以合理排除孔隙分布对物相识别的干扰。利用物相掩模确定彩色 EDS 图像物相分布特征后，采用 SLIC 算法对该区域进行超像素划分，超像素数量设置为 10 000 个。利用超像素提取 BSE 图像和定量元素面谱信息，将超像素范围内所有像素灰度特征和元素相对含量的平均值作为超像素的特征值，最终形成基于超像素的 BSE-EDS 数据表，该数据表包括超像素质心坐标、元素含量和灰度值等基本特征，并可灵活扩展元素比例等衍生特征。

1.3.3 PHATE-GMM 物相自动识别模型 尽管可以利用机器学习聚类算法 K-means 或 GMM 等对 BSE-EDS 数据表中的元素含量特征直接进行聚类

分析，但所得出聚类结果的可解释性相对较差，很难基于聚类结果进行参数优化和算法改进。因此，采用常用于生物信息降维和可视化分析的基于扩散映射和多维标度分析算法 PHATE^[26]对元素特征进行降维，生成 PHATE-X 和 PHATE-Y 2 个衍生特征，再利用 GMM 算法对衍生特征进行聚类分析，从而实现物相识别的自动化。PHATE 算法能够较为精准捕捉 EDS 数据潜在特征，其形成的 PHATE 图像中端点、分支和延伸等数据结构具有一定的材料学意义。尽管这些数据结构不一定能和胶凝材料反应机理和物相演化规律严格对应，但仍为解释聚类结果，分析物相关系提供直观的参考依据^[22]，最终将聚类结果进行重映射得到物相的空间分布。PHATE-GMM 模型示意图如图 3 所示。

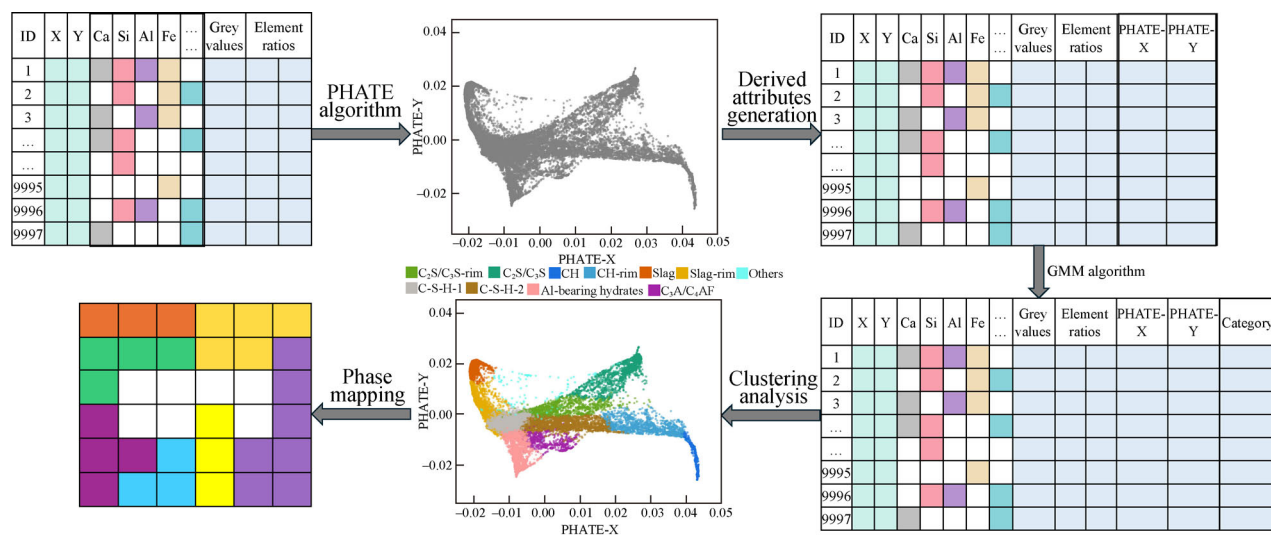


图 3 PHATE-GMM 模型示意图
Fig. 3 Schematic diagram of PHATE-GMM

2 结果与讨论

2.1 物相识别效果分析

图 4 为原材料样品去杂质、去树脂后的物相识别结果。图 4a 为彩色 EDS 图像，图 4b 为物相分布的伪色图，图 4b 中的颜色与图 4c~图 4f 中的物相标识颜色对应。通过图 4a 和图 4b 对比可以发现，物相自动识别结果与 EDS 图中物相的分布情况基本一致，说明所建立的 PHATE-GMM 基本有效。水泥熟料中的硅酸盐类矿物 C_2S/C_3S 根据颜色和元素的对应关系，在 EDS 图像中为蓝紫色，物相图中标记为绿色；水泥熟料中的铝酸盐类矿物 C_3A/C_4AF 在 EDS 图像中为荧光蓝色，物相图中标记为紫色；GGBFS 在 EDS 图像中呈粉色，物相图中标记为橙

色；石膏在 EDS 图像中呈浅黄色，在物相图中标记为蓝色。根据 QXRD 分析结果所折算的原材料体系中各物相体积占比分别为 C_2S/C_3S 48.27%， C_3A/C_4AF 9.41%，石膏 2.88%，GGBFS 39.44%。通过对 10 张原材料视场进行 BSE-EDS 图像分析所得出的各物相面积占比分别为 C_2S/C_3S 52.67%， C_3A/C_4AF 15.28%，石膏 3.20%，GGBFS 28.85%。造成 BSE-EDS 图像量化分析方法与 QXRD 存在差异的原因有以下几个方面：尽管原材料分布满足空间异质性原理，但物相间的面积相对占比与物相体积相对占比并不完全等效；在利用 QXRD 所得质量分数进行物相体积分数折算时，所采用的平均密度不一定能反映物相真实密度情况；BSE-EDS 图像分析视场数量有限，所得出的结果不一定具备统计代表性。

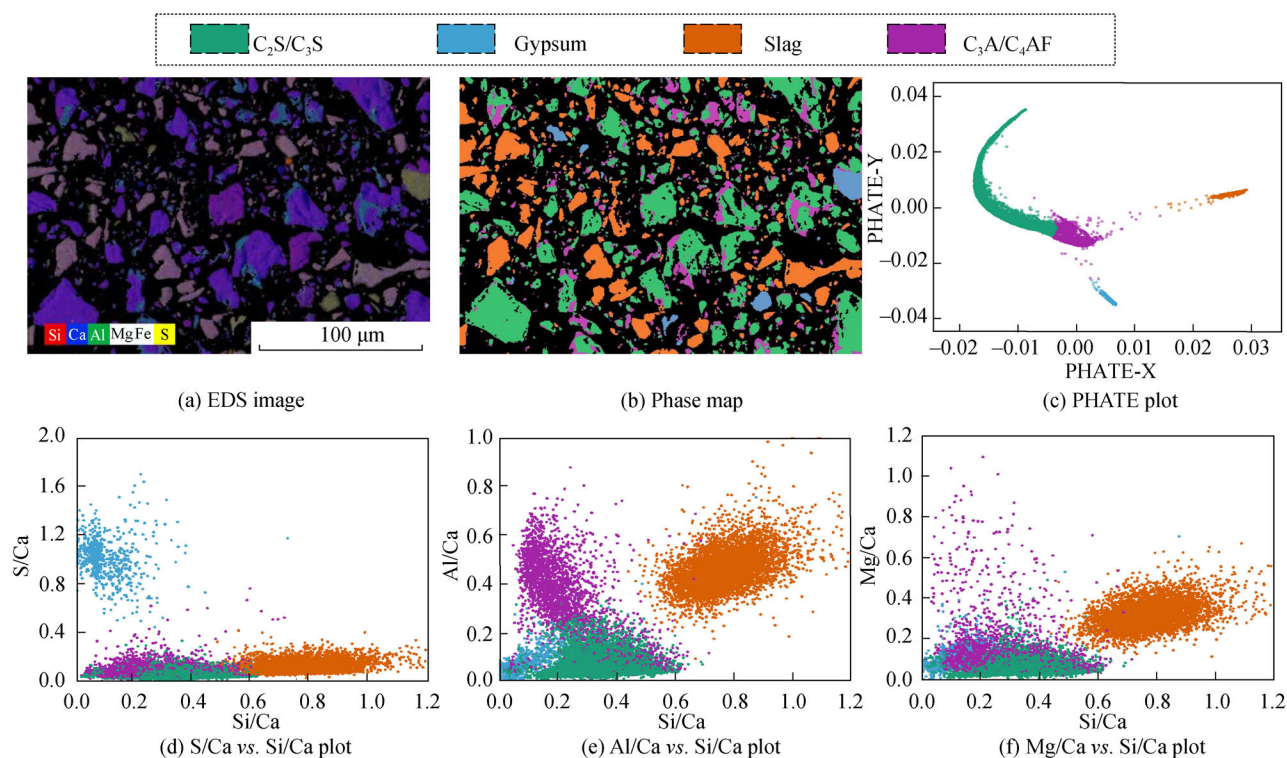


图4 原材料样品物相组成

Fig. 4 Phase assemblage of raw material samples

从图 4c 的 PHATE 图可以看出,石膏和矿粉由于元素组成与水泥存在较大差异,因此在 PHATE 图中呈孤立的簇状分布, C_3A/C_4AF 在水泥烧结过程中容易覆盖在 C_2S/C_3S 的表面,在 EDS 图像中 C_3A/C_4AF 常内嵌于 C_2S/C_3S ,在超像素划分过程中很难精准区分 2 类物相,因此在 PHATE 图中二者存在部分重叠。从图 4d~图 4f 的元素比例图中可以看出,所识别的石膏具有较高的 S/Ca 比,矿渣的 Al/Ca、Si/Ca 和 Mg/Ca 比都相对较高,这两类物相的识别结果和物相真实元素组成基本接近。所识别的 C_3A/C_4AF 中有一部分物相的 Mg/Ca 相对较高,这是因为水泥熟料中含有一定量的方镁石,在去杂过程中未能全部去除。

图 5 为龄期 7 d 水化样品去杂质去孔隙后的物相识别结果,富铝的水化产物如 AFt/AFm 在 EDS 图像中呈深绿色,水泥水化所形成的氢氧化钙(CH)和水化硅酸钙(C-S-H)在 EDS 图像中分别呈深蓝色和紫红色。各物相识别结果和 EDS 图像中物相分布情况基本吻合。根据物相组成和 PHATE 图结构,将水化复合净浆中的物相分为 C_2S/C_3S 、 C_2S/C_3S -rim、CH、CH-rim、slag、slag-rim、 C_3A/C_4AF 、C-S-H-1、C-S-H-2、富铝水化产物(Al-bearing hydrates)和少数杂质(Others),在伪色图中分别用深

绿色、浅绿色、深蓝色、浅蓝色、深橘色、黄色、紫色、灰色、棕色、粉色和荧光蓝表示。通过图 5c 的 PHATE 图可以发现,反应物如水泥熟料和矿渣等均处于 PHATE 结构的端点,Al-bearing hydrates 和 CH 等关键水化产物也处于 PHATE 结构的端点位置,C-S-H 由于存在微小物相混杂,且含量最多,处于 PHATE 图的核心位置。主要反应物与 C-S-H 的过渡地带一般是由于 C-S-H 与反应物混杂导致,简记为 rim 区。从图 5b 也可以看出,CH、 C_2S/C_3S 和 slag 基本被其 rim 物相包裹,证明 PHATE 图像中物相相互关系与实际空间位置具有较好的一致性。从图 5d~图 5f 的元素比例可以看出,Al-bearing hydrates 具有较高的 S/Ca 比例,这是因为 AFt 和 AFm 等多为铝酸盐和铁铝酸盐类矿物与石膏中硫酸盐离子结合生成。Slag-rim 表现出比 slag 更高的 Mg/Ca 比例,这是因为矿渣在反应过程中会在矿渣周围形成一个 Mg 离子含量较高的过渡区域^[27]。

图 6 为龄期 14 d 水化样品去杂质、去孔隙后的物相识别结果。从图 6b 可以看出,水泥熟料中 C_2S/C_3S 和 C_3A/C_4AF 的过渡地带被识别为杂质,在 PHATE 图中该杂质物相也位于 C_2S/C_3S 和 C_3A/C_4AF 之间。与龄期 7 d 的水化样品相比,龄期 14 d 的水化样品 C_2S/C_3S 边缘区域不明显。此外,7 d

时, PHATE-GMM 将 C-S-H 分为 2 类; 在 14 d 时, PHATE-GMM 在自动划分时, 将 C-S-H-物相分为 3

类。样本视场局限性可能导致 C-S-H 分类差异, 后续可采用图像拼接的方式进行多图合并分析提高

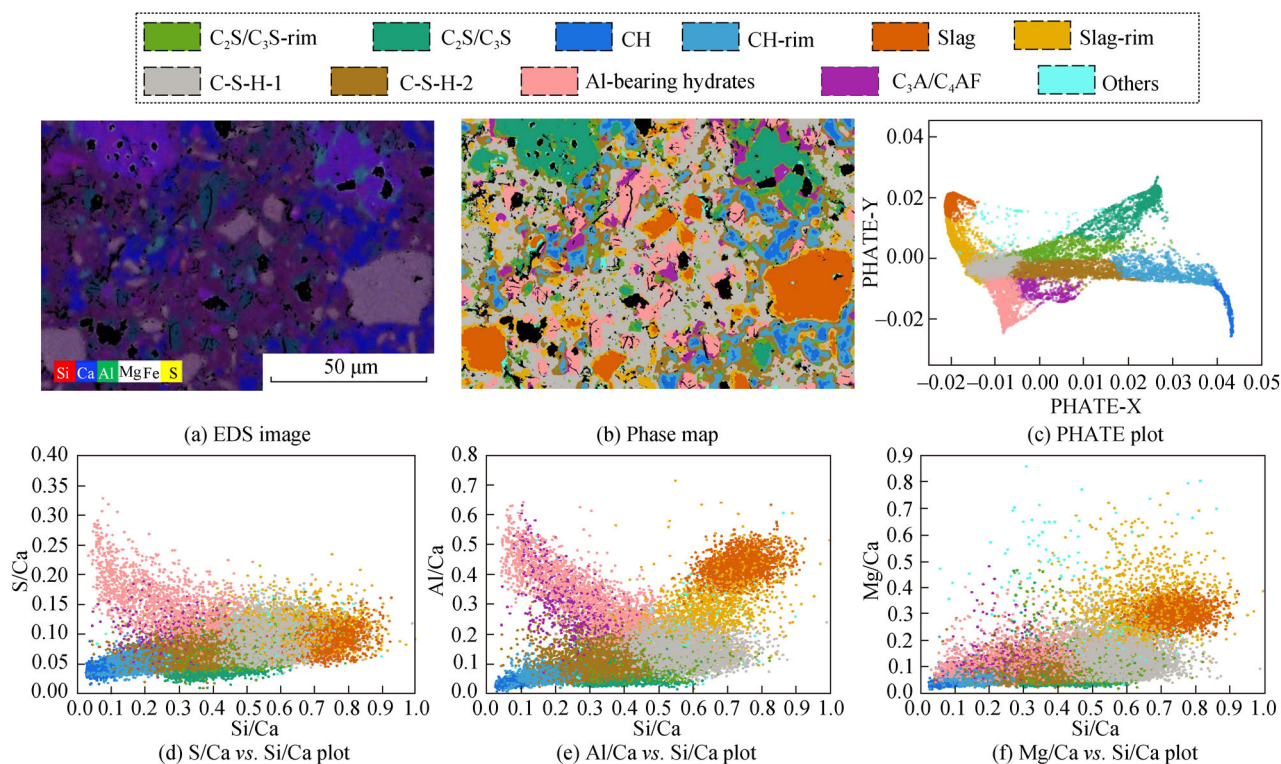


图 5 7 d 龄期水化样品的物相组成

Fig. 5 Phase assemblage of hydrated paste samples at curing age of 7 d

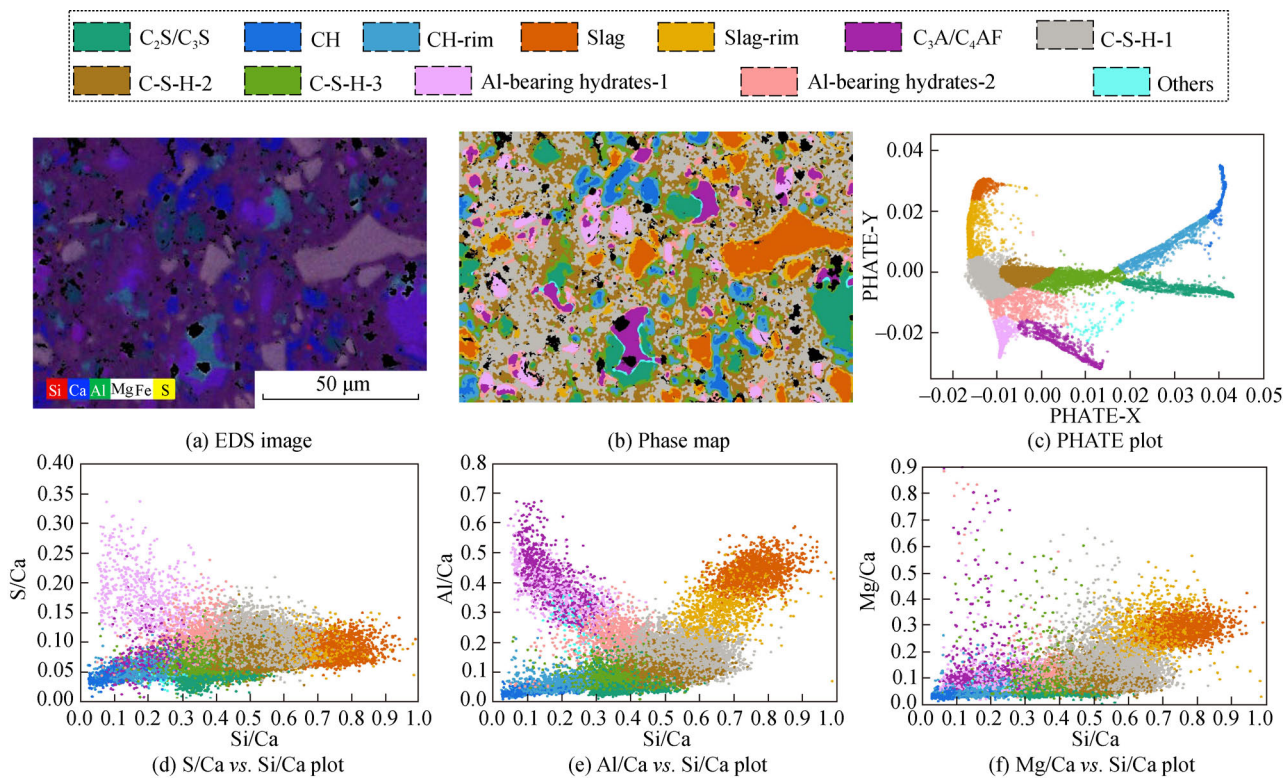


图 6 14 d 龄期水化样品的物相组成

Fig. 6 Phase assemblage of hydrated paste samples at curing age of 14 d

微观表征结果的统计代表性。同理, Al-bearing hydrates 这类物相根据 PHATE 数据结构分为 Al-bearing hydrates-1 和 Al-bearing hydrates-2 两类。一类处于端点位置。一类处于与 C-S-H 相连的过渡区域。图 6d~图 6f 显示, Al-bearing hydrates-1 因含有较多 AFt/AFm 因此具有较高的 S/Ca 比例。Al-bearing hydrates-2 推测为 AFt/AFm 与 C-S-H 的混合物, 其 Al/Ca 比例较普通 C-S-H 更高, 但低于 Al-bearing hydrates-1。从 PHATE 图中可以看出 C-S-H-1 距离矿渣距离更近, 且其 Al/Ca 比和 Mg/Ca 比均高于其他类别的 C-S-H, 因此推测 C-S-H-1 含有较多的矿渣反应产物。综合图 4~图 6 可见, 仅依赖元素比例难以精准区分物相, PHATE-GMM 不仅能通过捕捉元素差异实现物相精准识别, 其数据结构还可辅助分析物相动态演化规律, 且与物相空间分布关系具有一定的相关性。

2.2 基于 Glue 的多模态特征多视图交互分析技术

Glue 是一个用于探索数据关系的 Python 工具库。基于 Glue 分析平台, 可灵活构建散点图、直方图、密度分布图和数据二维/三维图像等, 并基于数据底层逻辑关系实现跨模态数据的交互分析, 提高对数据的理解程度和操作效率, 支持数据间的逻辑运算和增删补改^[28]。微观多模态特征多视图交互分析模式如图 7 所示。首先以超像素质心坐标为锚点, 将经过 PHATE-GMM 处理后的数据表与 BSE 图像关联, 并将二者作为输入信息用于微观多模态特征多视图交互分析。输出的多模态视图包括 PHATE 图像、物相空间映射图、元素比例散点图、元素含量散点图、元素分布密度图和元素含量直方图。任一视图中的数据逻辑运算和数据变动均会实时同步至所有视图, 实现同步、联动、交互分析。

基于 Glue 建立了局部分分析和全局分析 2 种模式对水泥矿渣复合净浆体系开展微观特征分析。局部分析模式适用于探索未经过聚类分析的胶凝体系元素信息, 特别是复杂的或新型的胶凝体系。通过多视图交互模型并结合专家经验和领域知识手动划分物相。全局分析模式适用于物相组成明确的成熟胶凝体系, 可直接基于聚类结果确定物相类别, 同时结合多视图联动分析结果优化聚类参数以提高物相识别的准确度。基于 PHATE 图像还可以构建元素分布密度图以可视化元素迁移路径。例如, 局部分析模式重点解析了 PHATE 图像底部 2 个端点所对应的物相, 结合物相在 BSE 图像中的形貌特征和 EDS 数据所反映的元素特征, 可判定绿色区域对应

富含大量 AFt/AFm 的 Al-bearing hydrates, 蓝色区域对应水泥熟料中的 C₃A/C₄AF。左下角的 Al 元素密度分布图像显示 Al 元素存在 2 条迁移路径: 一是矿渣火山灰反应的释放; 二是 Al-bearing hydrates 产物生成。全局分析模式中 Ca 元素密度分布图表明 Ca 元素迁移过程基本沿着 C₂S/C₃S 的水化反应和 CH 的生成进行。

2.3 物相网络拓扑图生成技术

为水泥矿渣复合胶凝体系物相演化规律研究, 提供可视化的新见解, 提出一种基于 PHATE 图的物相网络拓扑图生成技术, 如图 8 所示。PHATE 图的散点分布仅反映物相特征相似性, 难以通过空间密度直接得到物相含量信息。物相网络拓扑图通过双重可视化策略突破传统 PHATE 分析的局限性。该方法将各物相用圆圈表示, 以圆心位置表示 PHATE 图中物相元素特征的质心位置, 圆面积对应物相相对含量, 连线粗细揭示元素特征相似度。另外, 忽略模型中杂质相的拓扑关系, 聚焦关键物相的演化路径。物相网络拓扑图有效揭示了物相间的演化关联关系。各物相与其边缘物相间的连线明显较粗, 这表明边缘区域与对应物相元素特征的相似程度极高, 边缘区域一般为尚未完全反应的物相或为反应物和产物的混合物相。物相网络拓扑图通过空间位置、圆形尺度和连接强度三维度的协同表达, 既保留了 PHATE 图中物相相互关系等原始信息, 又融入物相含量特征, 实现物相关系的可视化重构, 为后续物相动态演化规律的定量化表征提供可靠的数据基础。

2.4 水泥矿渣复合胶凝体系微观表征案例

结合机器学习算法、图像处理技术和 Glue 多视图同步交互技术, 所建立的 BSE-EDS 图像智能分析方法可高效准确地判定水泥矿渣复合胶凝材料中孔隙和物相的含量及分布, 进而开展物相元素组成分析、演化规律研究和微观结构变化表征等下游应用, 如图 9 所示。首先利用 BSE-EDS 数据前处理策略对 BSE 图像、EDS 定性元素面谱和 EDS 定量元素面谱内的关键信息进行整合, 生成以超像素为基本分析单元的 BSE-EDS 数据表, 再利用 PHATE-GMM 对 BSE-EDS 数据表进行降维和聚类处理, 粗略确定水泥矿渣胶凝体系的物相组成、含量和分布后, 再利用 Glue 多视图分析技术开展多视图多模态数据同步交互探索, 引入专家知识对自动聚类结果进行优化, 提高物相识别和判定的准确性和可靠性。在完成上述 3 个主要步骤后, 从化学成分表征的角度

出发, 基于物相含量表征这一功能, 可以计算各胶凝材料的反应程度, 复杂胶凝材料中各物相的反应

活性, 明确影响胶凝体系微观性能发展的关键物相等。基于 BSE-EDS 图像的分析方法巧妙避免了晶

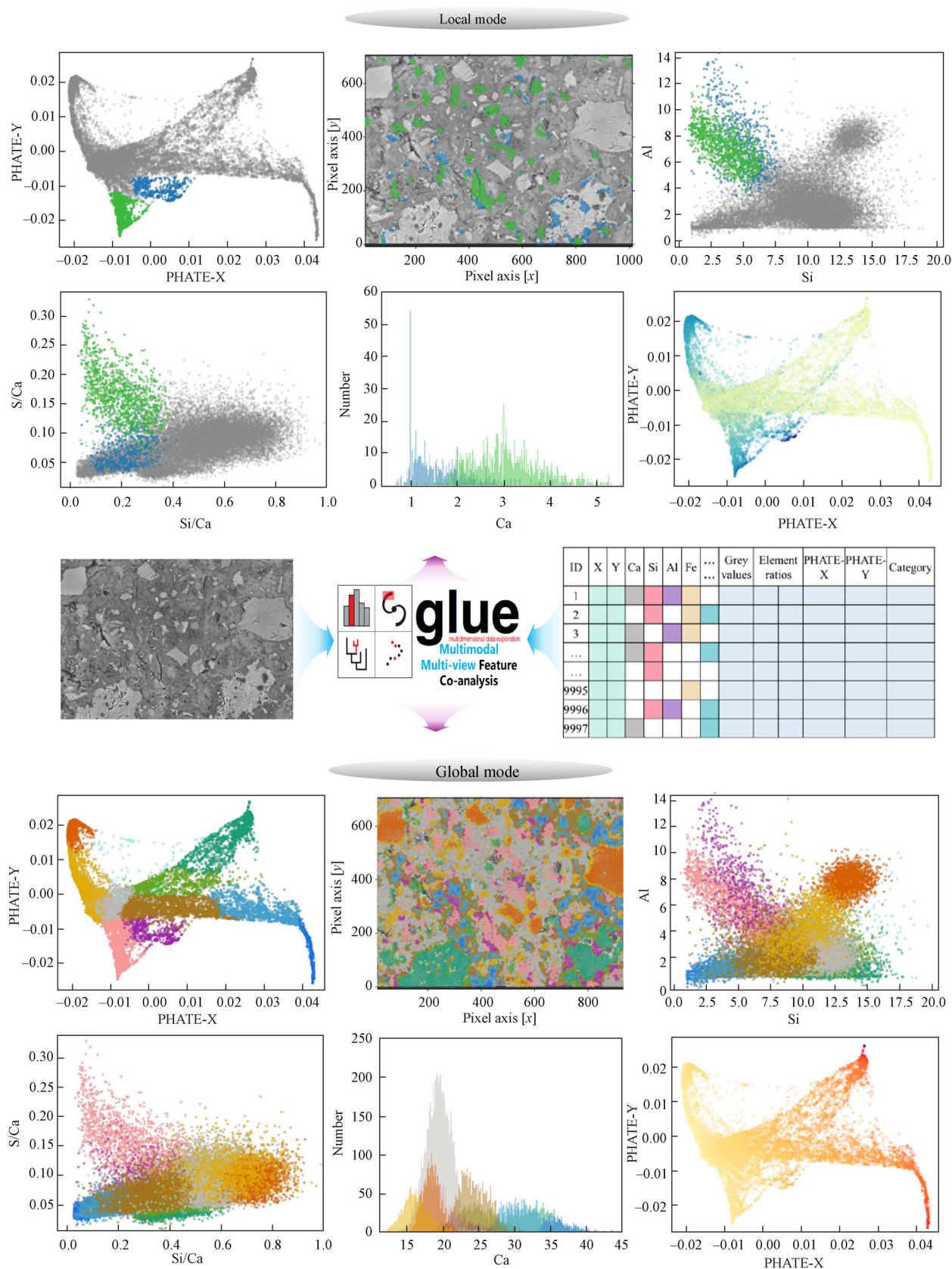


图 7 Glue 平台运用示意图

Fig. 7 Application diagram of Glue platform

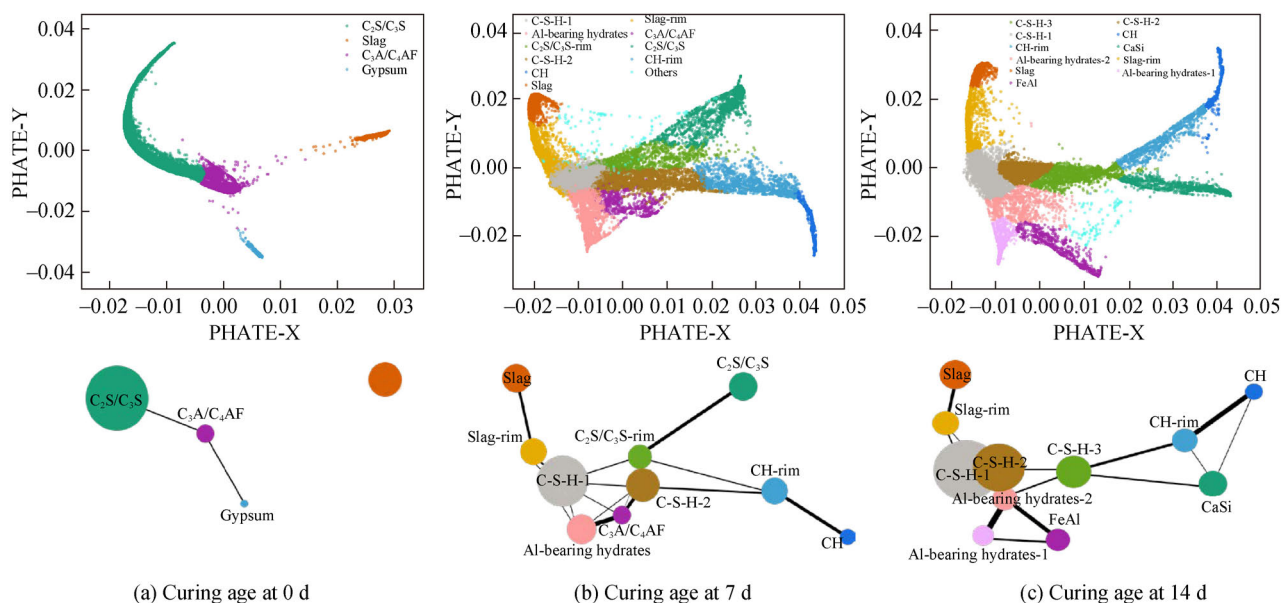


图 8 PHATE 图及物相网络拓扑图
Fig. 8 PHATE plot and phase network topology diagram

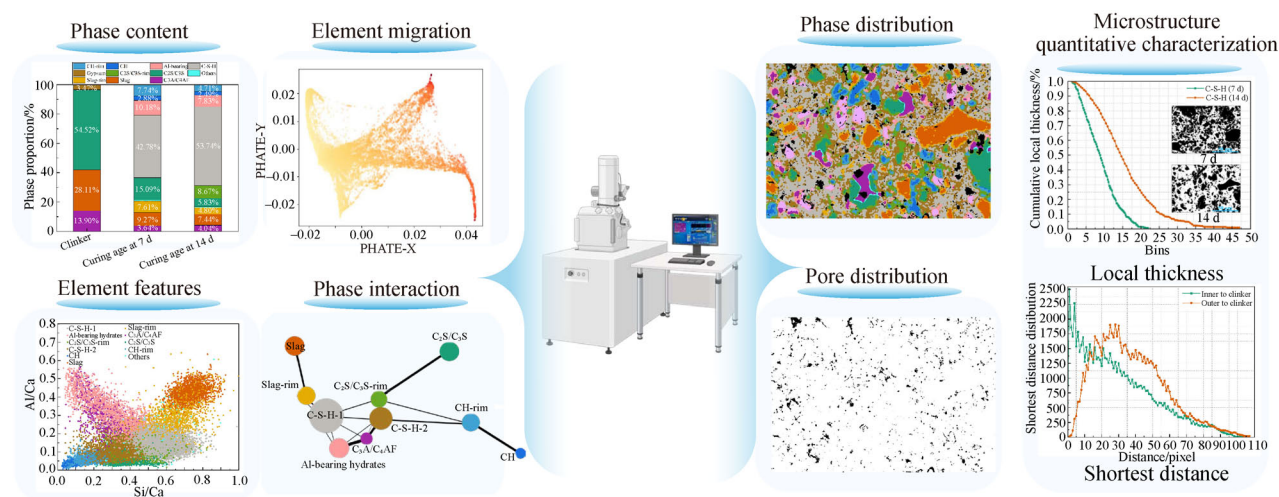


图 9 基于 BSE-EDS 图像智能分析的表征案例
Fig. 9 Characterization scenarios based on BSE-EDS image intelligent analysis

相和非晶相区分，非晶相细分等问题，适用于对粉煤灰和钢渣等物相组成复杂的固废材料开展研究。PHATE-GMM 为数据结构驱动型，算法参数对于物相划分效果的影响较大，且物相自动识别结果可能和真实物相存在不匹配或匹配效果不好的情况，导致无法有力支持胶凝材料的微观机理分析。因此，需要基于 Glue 平台引入专家知识进行数据探索和结果优化，以弥补 PHATE-GMM 的不足。基于物相元素特征表征这一功能，可以构建元素比例散点图、元素含量散点图、元素比例直方图和元素含量直方图等多类型图像，多视图廓清物相元素特征组成差异，辅助评估物相判据建立的科学性和合理性。相

比于传统的 EDS 点分析，利用 EDS 面谱数据进行元素分析一方面避免了手动选点的随意性和主观性，另一方面也节约了大量的时间。此外，基于 10 000 个左右的超像素进行物相元素特征分析一定程度上保证了元素特征分析的统计代表性。基于元素迁移规律表征这一功能，用户可以灵活探索胶凝体系中的主要元素如 Ca、Si、Al 和 S 等在物相间的浓度变化规律，利用元素迁移规律可以对离子传输规律进行初步定性分析，为理解胶凝体系的反应机理和物相演化提供可视化的分析方法。基于物相相互关系表征这一功能，可以直观分析物相含量和物相元素特征的差异程度，后续可以基于物相质心位

置、物相间连线粗细和圆面积开展差异分析,为实现物相演化的定量化分析提供基础数据支撑。从空间分布的角度出发,物相分布图和孔隙分布图可以直观呈现水泥矿渣复合胶凝体系的微观结构特征,所形成的相图也可以和 BSE 图像和彩色 EDS 图像开展对比分析,对物相识别效果和物相判据建立准则进行进一步评估。基于微观结构定量化这一功能,可灵活选择线性路径函数、两点相关函数、两点簇函数、局部厚度函数和最小距离函数等表征物相的空间分布特征^[29],通过统计函数定量表征不同龄期和不同材料配比参数对胶凝体系微观结构,特别是关键物相空间分布的影响规律。利用局部厚度函数计算了龄期 7 d 和 14 d 的 C-S-H 的空间分布特征。从 C-S-H 的物相掩模可以看出,随着龄期的增加,C-S-H 的含量及连通性明显增加。为综合考虑含量及空间分布特征,可利用局部厚度函数对 C-S-H 径向厚度进行定量分析,可以看出龄期为 14 d 的 C-S-H 最大径向厚度约为龄期 7 d 的 C-S-H 最大径向厚度的 2 倍。此外,以龄期 14 d 的视场为例,基于 PHATE 图的数据结构,将 C-S-H-1 作为外产物,将 C-S-H-2 和 C-S-H-3 的物相掩模进行合并作为内产物,利用最小距离函数分别测算了水化内产物和水化外产物到水泥熟料的距离。可以看出,内产物到水泥熟料的距离随着最小距离的增加,其频度函数逐渐下降,说明大部分的内产物离水泥熟料的距离较近,外产物到水泥熟料的距离随着最小距离的增加,其频度函数先增加后减小,说明大部分的外产物距离水泥熟料的距离适中。通过最小距离函数的统计分析,从空间分布的角度证明了内产物和外产物划分的合理性。

3 结论

1) 所提出的以超像素为基本分析单元的 BSE-EDS 数据表生成策略,可高效整合 BSE 图像灰度信息与定性和定量元素面谱的关键信息,具有通用性好和实用性强的特点。该框架有效克服了孔隙干扰和特征 X 射线与样品相互作用体积过大的问题,为水泥矿渣复合胶凝体系多模态特征提取和下游应用分析提供可行的数据管理方案。

2) 所开发的物相识别模型 PHATE-GMM,具有可解释性好和智能化程度高的特点,能够以一种相对透明和可理解的方式实现物相的自动化识别。PHATE 图的可视化结构可以为科学描述胶凝体系反应机理与动态演化机制,直观揭示物相间的相互

关系提供新的分析思路。

3) 基于 Glue 分析平台所构建的微观多模态特征多视图分析技术,可以实现化学模态与空间模态的同步联动探索,降低数据探索成本,为认识和理解胶凝体系物相组成提供新方法。另外,可引入专家经验基于 Glue 平台对物相自动聚类结果进行优化调整,提高物相判据建立的科学性和合理性。

4) 基于 BSE-EDS 图像智能分析框架,实现了水泥矿渣复合胶凝体系物相含量分析、物相元素特征分析、元素迁移分析、物相相互关系分析、相分布表征和微观结构定量化表征等下游运用,充分挖掘了 BSE-EDS 图像在胶凝体系微观表征的分析潜力,以达成“单次独立微观表征-多模态特征融合分析”的技术愿景。

参考文献:

- [1] SCRIVENER K L, BALDIE K D, HALSE Y, et al. Characterisation of microstructure as a systematic approach to high strength cements[J]. MRS Proc, 1984, 42: 39.
- [2] GAO Y, DE SCHUTTER G, YE G, et al. Characterization of ITZ in ternary blended cementitious composites: Experiment and simulation[J]. Constr Build Mater, 2013, 41: 742-750.
- [3] 马崇智. 基于背散射图像的水泥基材料自生自愈合潜力研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2018.
MA Chongzhi. Study on self-healing potential of cement-based materials based on backscattered images[D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2018.
- [4] 韩建国, 廉慧珍, 郭保林. 百年服役后的混凝土宏观和微观性能[J]. 硅酸盐学报, 2025, 53(1): 16-26.
HAN Jianguo, LIAN Huizhen, GUO Baolin. J Chin Ceram Soc, 2025, 53(1): 16-26.
- [5] DURDZIŃSKI P T, SNELLINGS R, DUNANT C F, et al. Fly ash as an assemblage of model Ca-Mg-Na-aluminosilicate glasses[J]. Cem Concr Res, 2015, 78: 263-272.
- [6] SCRIVENER K L, PATEL H H, PRATT P L, et al. Analysis of phases in cement paste using backscattered electron images, methanol adsorption and thermogravimetric analysis[J]. MRS Online Proc Libr, 1986, 85(1): 67.
- [7] WONG H S, HEAD M K, BUENFELD N R. Pore segmentation of cement-based materials from backscattered electron images[J]. Cem Concr Res, 2006, 36(6): 1083-1090.
- [8] HU C L, MA H Y. Statistical analysis of backscattered electron image of hydrated cement paste[J]. Adv Cem Res, 2016, 28(7): 469-474.
- [9] LI L H, YANG J, LI H Y, et al. Comparative study on backscattered electron image of cement paste quantified by frequency histogram, overflow and Gaussian distribution fitting method[J]. J Mater Civ Eng, 2022, 34(7): 04022124.
- [10] SONG Y, HUANG Z L, SHEN C Y, et al. Deep learning-based automated image segmentation for concrete petrographic analysis[J]. Cem Concr Res, 2020, 135: 106118.
- [11] LI L H, YANG J, LIU W W, et al. Overview of the application of quantitative backscattered electron (QBSE) image analysis to

- characterize the cement-based materials[J]. *Constr Build Mater*, 2023, 406: 133332.
- [12] DURDZIŃSKI P T, DUNANT C F, BEN HAH M, et al. A new quantification method based on SEM-EDS to assess fly ash composition and study the reaction of its individual components in hydrating cement paste[J]. *Cem Concr Res*, 2015, 73: 111–122.
- [13] WANG T, ISHIDA T, GU R. A study of the influence of crystal component on the reactivity of low-calcium fly ash in alkaline conditions based on SEM-EDS[J]. *Constr Build Mater*, 2020, 243: 118227.
- [14] GEORGET F, WILSON W, SCRIVENER K L. Edxia: Microstructure characterisation from quantified SEM-EDS hypermaps[J]. *Cem Concr Res*, 2021, 141: 106327.
- [15] MÜNCH B, MARTIN L J, LEEMANN A. Segmentation of elemental EDS maps by means of multiple clustering combined with phase identification[J]. *J Microsc*, 2015, 260(3): 411–426.
- [16] MARAGH J M, PALKOVIC S D, SHUKLA A, et al. SEM-EDS and microindentation-driven large-area high-resolution chemomechanical mapping and computational homogenization of cementitious materials[J]. *Mater Today Commun*, 2021, 28: 102698.
- [17] 姚羿舟, 刘超, 刘化威, 等. 热真空环境下碱激发模拟月壤物相分布特征与固化反应机理研究[J/OL]. *土木工程学报*, 2024: 1–14. (2024-12-31). <https://doi.org/10.15951/j.tmgcxb.24100828>.
YAO Yizhou, LIU Chao, LIU Huawei, et al. *China Ind Econ*, 2024: 1–14. (2024-12-31). <https://doi.org/10.15951/j.tmgcxb.24100828>.
- [18] LI L H, YANG J, SHEN X H. Measuring the hydration product proportion in composite cement paste by using quantitative BSE-EDS image analysis: A comparative study[J]. *Measurement*, 2022, 199: 111290.
- [19] LI L H, YANG J. Quantifying the microstructure evolution and phase assemblage of solid waste as construction materials by EDS image analysis: A case study of carbonated basic oxygen furnace slag aggregates[J]. *Constr Build Mater*, 2023, 393: 131892.
- [20] GEORGET F, BÉNIER C, WILSON W, et al. Chloride sorption by C-S-H quantified by SEM-EDX image analysis[J]. *Cem Concr Res*, 2022, 152: 106656.
- [21] GEORGET F, WILSON W, SCRIVENER K L. Simple automation of SEM-EDS spectral maps analysis with Python and the edxia framework[J]. *J Microsc*, 2022, 286(2): 185–190.
- [22] LI L H, YANG J, DING S. Quantifying the phase assemblage in the hydrated cement paste by an interpretable and automatic EDS image analysis framework[J]. *Measurement*, 2023, 223: 113765.
- [23] LI L H, YANG J, LI H Y. Quantifying the microstructure and phase assemblage of alkali-activated fly ash/slag materials by EDS mapping analysis[J]. *Mater Des*, 2023, 234: 112320.
- [24] LI L H, YANG J. Image enhancement and microstructure characterization of energy dispersive X-ray spectroscopy images of blended cement pastes[J]. *Expert Syst Appl*, 2024, 247: 123293.
- [25] SCRIVENER K L. Backscattered electron imaging of cementitious microstructures: Understanding and quantification[J]. *Cem Concr Compos*, 2004, 26(8): 935–945.
- [26] MOON K R, VAN DIJK D, WANG Z, et al. Visualizing structure and transitions in high-dimensional biological data[J]. *Nat Biotechnol*, 2019, 37(12): 1482–1492.
- [27] JIA Z J, CHEN C, ZHOU H Y, et al. The characteristics and formation mechanism of the dark rim in alkali-activated slag[J]. *Cem Concr Compos*, 2020, 112: 103682.
- [28] GOODMAN A A. Principles of high-dimensional data visualization in astronomy[J]. *Astron Nachr*, 2012, 333(5/6): 505–514.
- [29] LI L H, MAO L X, YANG J. A review of principles, analytical methods, and applications of SEM-EDS in cementitious materials characterization[J]. *Adv Mater Technol*, 2024: 2401175.

Multimodal and Multiview Characterization of Cementitious Blended Binders Using Intelligent BSE–EDS Image Analysis

LI Lihui¹, WANG Xiangquan¹, YAO Yizhou², MAO Lixuan³, YANG Jian⁴

(1. Department of Civil Engineering, Faculty of Civil Engineering and Mechanics, Kunming University of Science and Technology, Kunming 650500, China; 2. School of Civil Engineering, Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, China;

3. School of Civil Engineering and Architecture, Xiamen University of Technology, Xiamen 361024, Fujian, China;

4. School of Naval Architecture, Ocean and Civil Engineering, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China)

Extended Abstract

Introduction The precise characterization of microstructure in cement-slag blended pastes is pivotal for understanding reaction mechanisms and optimizing material performance. Traditional methods relying on single-model analysis face limitations in distinguishing phases with similar grey value ranges and integrating multi element mappings. This study proposes an intelligent Backscattered electron and Energy-Dispersive X-ray Spectroscopy (BSE-EDS) image analysis methodology, integrating standardized pre-processing procedures, Potential of Heat-diffusion for Affinity-based Trajectory Embedding and Gaussian Mixture Model (PHATE-GMM) based phase identification model, and Glue-based Multiview visualization, to achieve multimodal characterization of cement-slag pastes. The framework bridges the gap between the BSE image and EDS element mappings with multimodal features in cementitious systems, enabling comprehensive phase identification, element migration analysis, chemical composition analysis, phase evolution tracking, and microstructure quantitative characterization.

Methods Cement-slag paste (30% slag replacement ratio, water-to-binder ratio 0.4) were prepared, cured (0, 7 d and 14 d), and examined by Scanning electron microscope (SEM) after epoxy impregnating and polishing. The BSE image, qualitative element mappings, and quantified element mappings were acquired with accelerating voltage of 15 kV, working distance of 11 mm. A

BSE-EDS data preprocessing pipeline was developed: (1) Guided filtering enhanced EDS element mapping resolution using BSE image as guided image; (2) Generating phase masks excluding pore and epoxy interference; (3) Super-pixel segmentation on phase region (10 000 units) to integrates grey value information from BSE images and element information from quantified element mappings. The PHATE-GMM model combined PHATE dimensionality reduction algorithm for 2D visualization with GMM for clustering PHATE-derived attributes, achieving automated and interpretable phase identification. Glue platform enabled synchronized multi-view interactive analysis (element scatterplots, phase maps, PHATE plots, element histograms, density plots) to validate phase identification results and explore phase relationships.

Results and discussion PHATE-GMM model achieved great consistency with visual inspection-labeled phases. In raw materials, distinct clusters corresponded to cement clinker, slag and gypsum. The C_3A/C_4AF phases are frequently embedded within the C_2S/C_3S phases, which results in partial super-pixel regions containing both phases during super-pixel segmentation. Consequently, interconnected clusters can be observed in PHATE plot. For hydrated pastes, rim phases (*e.g.*, C_2S/C_3S -rim, slag-rim, CH-rim) emerged as transitional zones between critical phases and C-S-H. The spatial distribution and element composition analyses of both slag-rim and slag demonstrate that the slag-rim exhibits a lightly higher Mg/Ca ratio compared to slag, indicating a distinct enrichment of Mg ions in the rim region. Local analysis mode *via* Glue facilitates element exploration in un-clustered cementitious systems, particularly for complex or novel binders. Global analysis mode *via* Glue, suitable for well-characterized cementitious systems. PHATE-derived element density maps further enable visualization of ion migration pathways. The phase network topology diagram achieves tri-dimensional synergistic representation through spatial positioning, radial scale, and connection line thickness parameters, while preserving the original relational information between phases shown in PHATE plots and simultaneously incorporating phase content features. The BSE-EDS image intelligent analysis methodology established in this study enables efficient and accurate determination of pore and phase in cement-slag binders, thereby enabling multiple downstream applications including elemental composition analysis of phases, investigation of evolutionary patterns, and quantitative characterization of microstructure.

Conclusions 1) The proposed pipeline for generating BSE-EDS datasets demonstrates strong generalizability and practicality, effectively mitigating the impact of pore interference and excessive interaction volume on phase identification, providing a viable data management solution for multimodal feature extraction and downstream analysis in cementitious systems.

2) The developed PHATE-GMM phase identification model exhibits high interpretability and intelligence, enabling comprehensible automated phase identification. The visualization structure of PHATE plot offers novel analytical insights for scientifically describing reaction mechanisms and microstructure evolution in cementitious systems.

3) The Glue-based multimodal feature analysis technique facilitates synchronous and interactive exploration of chemical and spatial modalities, allowing for expert-guided optimization of automated phase clustering results.

4) The intelligent BSE-EDS image analysis methodology enables comprehensive downstream applications, which fully exploits the analytical potential of BSE-EDS for microstructural characterization, realizing the technical vision of "single independent micro-characterization - multimodal feature fusion analysis".

Keywords cementitious materials; backscattered electron image; energy-dispersive X-ray spectroscopy image; microstructural characterization; image processing