



国际 科学技术前沿 报告 2019

张志强 主编

国际科学技术前沿报告 2019

科学出版社



 科学出版社

X 射线自由电子激光发展态势分析

李泽霞 魏韧 郭世杰 刘小平 董璐 李宜展

(中国科学院文献情报中心情报研究部, 北京, 100190)

摘要 X 射线自由电子激光是一种全新的光源, 具有高峰值亮度、超短时间脉冲、接近傅里叶变换极限的频谱线宽、波长可调谐和全相干的优越特性, 让人们能用亚纳米尺度的空间分辨能力研究飞秒时间尺度的原子与分子体系的结构和超快动力学过程, 已成为破解生物、物理、化学及材料等众多科学前沿重大难题的科研利器, 为实验科学的发展提供了一个崭新的革命性技术。为把握 X 射线自由电子激光领域的国际发展态势, 本报告定性调研了主要国家/地区 X 射线自由电子激光设施的布局情况和战略部署, 基于 X 射线自由电子激光设施的论文产出数据定量分析了该领域的研究热点和前沿, 对 X 射线自由电子激光在各领域的应用发展趋势做了分析, 并建议我国应该积极开展 XFEL 的实验技术与方法学研究, 以保证未来 X 射线自由电子激光装置能够高水平地服务于各学科的前沿研究; 重视对相关科研应用的支持, 基于 XFEL 的技术特点, 预先规划部署相关科研应用; 同时建议在国家层面设立 XFEL 国际合作专项, 大力推动与世界各 XFEL 装置建设运行单位的合作交流。

关键词 X 射线自由电子激光 设施布局 战略部署 文献计量

目 录

1. 引言	3
2. 各国 X 射线自由电子激光设施布局	3
2.1 各国硬 X 射线自由电子激光装置	3
2.1.1 美国 SLAC 实验室的 LCLS	4
2.1.2 日本理化所的 SACLA	5
2.1.3 韩国浦项加速器实验室的 PAL-XFEL	6
2.1.4 瑞士 PSI 的 Swiss-FEL	6
2.1.5 欧洲的 Euro-XFEL	7
2.2 各国软 X 射线自由电子激光装置	8
2.2.1 德国 DESY 的 FLASH	8
2.2.2 意大利 ELETTRA 实验室的 FERMI	9
2.2.3 中国软 X 射线自由电子激光	9
3. 各国在 X 射线自由电子激光的发展战略和部署	10
4. X 射线自由电子激光研究及应用论文分析	11
4.1 年代分布	11
4.2 国家（地区）分布	12
4.3 机构分布	13
4.4 期刊分布	14
4.5 学科分布	15
4.6 高引用论文分析	16
4.7 高频关键词分析	19
4.8 中国情况分析	20
5. X 射线自由电子激光的应用发展趋势	23
5.1 X 射线自由电子激光在物理研究方面的应用	23
5.1.1 空心原子与分子爆炸	23
5.1.2 泵浦—探针实验	23
5.1.3 关联体系动力学	23
5.2 X 射线自由电子激光在结构生物学中的应用	23
5.2.1 近自然/生理状态下解析微小蛋白质晶体结构	23
5.2.2 重要膜蛋白晶体结构解析	23
5.2.3 时间分辨晶体学的研究	23
5.2.4 底物驱动的慢反应过程监测	23
5.3 X 射线自由电子激光对原子分子的实验研究	24
5.3.1 惰性气体原子的光电离激发研究	24
5.3.2 分子超快动力学研究	24
5.4 X 射线自由电子激光在材料方面的研究	24
6. 启示建议	25
6.1 积极开展 XFEL 实验技术与方法学研究	25
6.2 加强对基于 XFEL 的科学研究的部署	25
6.3 积极开展国际合作	25

1. 引言

1971年, John Madey发现在波荡器中运动的相对论性自由电子能与光相互作用从而产生相干辐射放大, 自由电子激光也因此得名。按照放大增益, 可将自由电子激光分为低增益和高增益两种放大机制的自由电子激光: 低增益自由电子激光的放大器部分由波荡器和光学谐振腔组成; 高增益自由电子激光的放大器仅由波荡器或外加常规种子激光系统组成。高增益模式是短波长自由电子激光的基本工作原理。高功率、短波长自由电子激光已经成为现代科学研究越来越重要的工具, 真空紫外、极紫外到 X 射线的短波长自由电子激光是自由电子激光发展的一个主要方向。传统激光器很难达到硬 X 射线区, 而且它们不能调谐, 覆盖的波长范围也很小。因此, 自由电子激光是最有希望的相干 X 射线光源, 其在短波长激光领域的研究引起人们的强烈兴趣(赵振堂等, 2018)。

X射线自由电子激光(X-ray free electron laser, XFEL)是一种全新的光源, 比第三代同步辐射光源性能更为优越。XFEL具有高峰值亮度、超短时间脉冲、接近傅里叶变换极限的频谱线宽、波长可调谐和全相干的优越特性, 已成为破解生物、物理、化学及材料等众多科学前沿重大难题的科研利器。XFEL的出现使得泵浦-探针实验、X射线相干散射成像实验、X射线衍射成像实验成为可能, 也使得化学、物理、材料、生物学研究从拍摄分子照片的时代跨越到了录制分子电影的时代。

2005年, 德国汉堡自由电子激光(FLASH)装置在极紫外到软X射线波段的自由电子激光出光并开始用户实验, 成为世界首台自放大自发辐射自由电子激光(SASE FEL)用户装置。2009年, 美国SLAC的直线加速器相干光源(LCLS)装置顺利出光, 标志着硬XFEL时代的到来。2010年, 意大利的FERMI@Elettra装置首次出光, 投入用户实验。2011年, 日本的“紧凑型”硬X射线FEL SACLA装置首次出光。2015年6月, 瑞典软X射线自由电子激光MAX IV Linac投入运行, 其首要目标是向MAX IV的两个存储环光源提供光束线, 当目标达成时可作为自由电子激光使用(Thorin et al. 2014)。2017年6月, 韩国的PAL-XFEL于向用户开放。2017年9月, 全球最大的X射线激光器欧洲X射线自由电子激光(European XFEL)在汉堡大都市区正式投入使用。2017年11月, Swiss-FEL开始接待首批用户。上海软X射线自由电子激光装置(SXFEL)试验装置和用户装置分别于2014年12月和2016年11月开工建设, 目前正在进行设备安装, 预计在2019年底开始用户实验。2018年4月, 我国迄今为止投资最大的重大科技基础设施项目“硬X射线自由电子激光装置”在上海启动建设, 计划于2025年建成。

目前, XFEL光源进入了快速发展阶段, 一系列化学、生物、物理、材料科学的前沿研究成果不断涌现。XFEL让人们能用亚纳米尺度的空间分辨能力研究飞秒时间尺度的原子与分子体系的结构和超快动力学过程。国际XFEL的快速发展为实验科学的发展提供了一个崭新的革命性技术, 将带来物理、化学、材料科学、生命科学及核技术等领域的一系列重大变革。

2. 各国 X 射线自由电子激光设施布局

2.1 各国硬 X 射线自由电子激光装置

硬X射线通常是指波长较短, 能量较高的x射线, 波长在0.01nm~0.1nm之间, 穿透性较强, 适用于金属部件的无损探伤及金属物相分析。硬x射线自由电子激光将为多学科提供高分辨成像、超快过程探索、先进结构解析等尖端研究手段。主要国家在X射线自由电子激光方面均积极布局, 截至目前, 世界上在运行的硬X射线自由电子激光装置有5个, 在建或升级的有2个(见表1)。

有助于实现毫秒级时间分辨率；此外，利用小晶体的另一优势是诱发的构象变化在整个晶体中的时间和空间上更为一致。通过串行晶体学实验方法，还可以通过混合后注入(mix-and-inject)的样品输送方式对底物触发的慢反应过程进行观测。

5.3 X 射线自由电子激光对原子分子的实验研究

X 射线自由电子激光可以对惰性气体原子在强激光场中的电离行为进行研究，也可以用于观察光化学反应中的超快动力学过程(冯赫等, 2016)。X 射线自由电子激光可以满足化学反应中电子、原子和分子的动力学在飞秒时间尺度的研究，引入在飞秒化学中非常成熟的时间分辨(抽运-探测)实验方法，结合先进的探测技术，如吸收或发射光谱、光电离能谱(光子-离子/光电子能谱)，反应碎片动量分布和角分布等，实时测量分子在时域上的结构变化和控制电离、解离过程中的反应通道，再现分子内部的微观动力学过程。

5.3.1 惰性气体原子的光电离激发研究

X 射线自由电子激光可以提供高强度的相干辐射，这为研究短波多光子吸收多电子电离激发的非线性现象提供了可能，这些非线性光学现象呈现出复杂的电子-电子强关联，进一步提升人们对强关联体系的认知。相关研究包括 He 原子双光子双电离研究、Ne 原子的多光子多电离非线性光谱研究、Xe 原子的电离行为研究和 Kr 原子的光激发电离研究等。

5.3.2 分子超快动力学研究

由于分子具有振动等更多的自由度，这里不仅有更复杂的非线性过程，还有更丰富的分子动力学过程。利用 X 射线自由电子激光抽运-探测技术，进行由锥形交叉等引起的分子中间态能量转移、分子成键断键、分子构型变化等的研究。通过对反应碎片动能(Kinetic Energy Release, KER)和角分布的测量，能够得到分子与自由电子激光相互作用后不同的反应通道，以及在抽运光和探测光产生的延迟时间坐标下得到反应通道的时间信息，从空间和时间上探索光激发分子反应动力学过程。

5.4 X 射线自由电子激光在材料方面的研究

飞秒光谱常被用来研究体系的超快动力学过程，它能帮助我们理解物质的结构和功能、化学反应过程、相变，以及样品中的核运动及物质表界面中的许多现象(张文凯等, 2018)。然而，由于空间分辨率低，复杂系统的光学光谱观测往往不能够清楚地反应分子间的结构动力学信息。因此，长期以来，研究人员一直在尝试利用波长在原子间距离量级或更短的辐射脉冲代替光探针脉冲。其中，由于其固有的短波长特性，X 射线和电子是最主要的两个选择，主要的技术难点在于如何产生足够强度的飞秒 X 射线或电子脉冲。在飞秒电子脉冲方面，近年来有研究人员已经取得了长足的进步并应用于超快电子散射、衍射和显微镜等技术上。

由 XFEL 产生的飞秒 X 射线脉冲同时拥有原子纳米空间分辨率和飞秒时间分辨率两大鲜明优势，从而为我们在原子运动时间尺度上研究体系的结构动力学过程提供了前所未有的技术手段。XFEL 的出现不仅提高了现有超快 X 射线实验方法的研究能力，而且使得一些新的实验方法成为可能。

对于不同的样品，不同的反应过程和生物化学结构，其动态过程的时间尺度是不一样的。所以，选择合适的探测手段，对我们研究不同的动力学过程至关重要。同时，恰当的探测方式不但会提高系统的分辨率，还可以提高资源的利用效率。XFEL 大量的实验技术可以用于高时间分辨的材料研究，相关技术包括：时间分辨技术、飞秒 X 射线吸收光谱、飞秒 X 射线发射光谱、飞秒共振非弹性 X 射线散射(Resonant Inelastic X-ray Scattering, RIXS)、飞秒 X 射线衍射(X-ray Diffraction)、飞秒 X 射线漫散射(X-ray Diffuse Scattering, XDS)。

利用这些技术，在原子和分子物理学领域，符合技术(coincidence techniques)将捕获罕见事件并深入理解具有飞秒分辨率的电荷转移过程。在化学领域，先进的 X 射线光谱技术有望提高我们对光催化电子机制的理解，从而改善太阳能转换效率。双色 X 射线脉冲将捕获光激发催化系统中的电荷动态和构象变化。在强相关系统中，使用时间分辨的高分辨率 x

射线光谱方法研究由晶格，自旋和电荷之间的相互作用引起的突发现象。通过增加高重复频率 X 射线 FEL 的通量将促进这些方法的进步。大于 15 keV 的高能量自由电子激光将在极端条件下更深入地穿透物质，从而在原子尺度上提供瞬态冲击现象。溶液散射方法可以在自然环境中实时展示复合物的生物学功能。高重复频率的硬 X 射线源将提高串联纳米晶体实验的吞吐量。由于解决了单粒子成像的技术挑战，实现了高强度超短 X 射线脉冲，可以常规表征生物分子结构而无需结晶。X 射线自由电子激光的应用产生了许多意料之外的方法和成果进展。随着近几年国际上多个 X 射线自由电子激光开始应用，可以预见科学的突破将进一步加速(Bostedt et al. 2018)。

6. 启示建议

6.1 积极开展 XFEL 实验技术与方法学研究

在科学家和技术专家大量扎实预研工作的基础上，我国软 X 射线自由电子激光的用户装置于 2016 年 11 月开工建设，预计在 2019 年底开始用户实验。2018 年 4 月我国硬 X 射线自由电子激光启动建设，预计于 2022 年完成建设。目前国际上对 XFEL 的实验技术和分析方法研究，在光源性能提升、实验装置研发、实验数据采集技术、结构分析技术等方面已经取得了很大进展。但是 XFEL 的实验技术和分析方法还没有成熟定型，仍处在发展之中。

我国目前还没有 X 射线自由电子激光装置，实验方法学的研究与国际上有很大差距，有很大加强和提升的空间。我国应该积极开展 XFEL 的实验技术与方法学研究，以保证未来 X 射线自由电子激光装置能够高水平地服务于各学科的前沿研究。同时，也应当考虑与现有的软 X 射线自由电子激光、光源、散裂源的实验技术互为补充，合理布局。

6.2 加强对基于 XFEL 的科学研究的部署

XFEL 作为多学科支撑平台，为多个学科的研究，包括物理、化学、材料和生命科学等提供了强大的探测和研究能力，基于 XFEL 强大的研究和探测能力，各个领域的前沿科学都得到了极大推动，取得了大量突破性的进展，同时也推动了众多科学领域的技术发展，辐射带动了相关产业的发展，例如光学、光电子、材料、制药等产业。虽然目前我国还没有自己可用的 XFEL 实验技术，但是应当重视对相关科研应用的支持，基于 XFEL 的技术特点，预先规划部署相关科研应用，与 XFEL 实验技术相辅相成，从而牵引并推动我国 XFEL 实验技术的研究和发展。

6.3 积极开展国际合作

建议在国家层面设立 XFEL 国际合作专项，大力推动与世界各 XFEL 装置建设运行单位的合作交流。国际上其他 XFEL 建设单位在实验技术与分析方法上各具特色，应结合自身优势展开多方位合作。特别加强与美国 SLAC 的 LCLS 合作。LCLS 作为世界上第一台硬 X 射线自由电子激光装置，LCLS 在飞秒纳米结晶学、动态研究及小角散射等领域具有领先水平。加强与日本 SACLA 的合作，作为世界上第二台硬 X 射线自由电子激光装置，SACLA 在相干衍射成像领域非常具有特色，加强在本领域的合作，能够使我们在更广的视野内了解成像方法的拓展及相关装置的提升，缩短我们在本领域的探索时间。在目前复杂的国际环境下，需要拓展并深化 XFEL 相关技术的国际合作，与带动我国相关技术的自主设计和研发能力，确保我国 X 射线自由电子激光装置能够为我们的前沿科学研究和技术提供强有力的支撑。

致谢：中国科学院上海高等研究院赵振堂研究员审阅全文，并提出宝贵的修改意见和建议，谨致谢忱！

参 考 文 献

- 冯赫, 张逸竹, 江玉海. 2016. 自由电子激光场中原子分子实验研究进展. 激光与光电子学进展, 10: 1~15
- 何建华, 徐春艳. 2018. X 射线自由电子激光晶体学在结构生物学中的应用. 物理, 47: 437~445
- 张文凯, 孔庆宇, 翁祖谦. 2018. X 射线自由电子激光在化学与能源材料科学中的应用. 物理, 47: 504~514
- 赵振堂, 王东. 2015. 更亮与更快: X 射线自由电子激光的前景与挑战. 物理, 44: 456~457
- 赵振堂, 冯超. 2018. X射线自由电子激光. 物理, 47: 481~490
- 赵振堂, 王东. 2019. 上海软 X 射线自由电子激光装置. 中国激光, 46(01) : 0101006.
- Bostedt C, Boutet S, David M. 2016. Linac Coherent Light Source: The first five years. Reviews of Modern Physics. 88: 1~59.
- DESY. 2019-03-25. Free-electron laser FLASH. <https://flash.desy.de/>
- DOE. 2018-08-16. Opportunities for Basic Research at the Frontiers of XFEL Ultrafast Science. https://science.energy.gov/~media/bes/pdf/reports/2018/Ultrafast_x-ray_science_rpt.pdf
- DOE. 2018-12-18. Research at the Frontiers of X-Ray Free Electron Laser Ultrafast Chemical and Materials Sciences. https://science.energy.gov/~media/bes/pdf/Funding/Research_at_the_Frontiers_of_X-Ray_Free_Electron_Laser_Ultrafast_Chemical_and_Materials_Sciences_Awards.pdf
- ELETTRA. 2018-12-15. Diagnostics and Beamlines. <http://www.elettra.trieste.it/lightsources/fermi.html>
- LCLS. 2018-01-15. LCLS Overview. <https://lcls.slac.stanford.edu/overview>
- LCLS. 2018-03-22. LCLS Publications Statistics. https://oraweb.slac.stanford.edu/apex/slacprod/slacesaf.pubs_lcls_stats
- PAL-XFEL. 2018-3-20. PAL-XFEL Beamlines. <http://pal.postech.ac.kr/paleng/Menu.pal?method=menuView&pageMode=paleng&top=7&sub=2&sub2=0&sub3=0>
- PSI. 2018-06-12. SwissFEL ARAMIS and ATHOS beamlines. <https://www.psi.ch/swissfel/beamlines-and-instruments>
- SACLA. 2018-01-15. What is SACLA. <http://xfel.riken.jp/eng/sacla/index.html>
- STFC. 2018-12-18. Free Electron Laser Strategic Review published. <http://www.stfc.ac.uk/news/free-electron-laser-strategic-review-published/>
- Thorin S, Andersson J, Curbis F. 2014. THE MAX IV LINAC. Proceedings of LINAC, Geneva, Switzerland: 400~403