

# 高增益自由电子激光与晶体学发展

赵振堂 王东 何建华

(中国科学院上海应用物理研究所 201800)

## 高增益自由电子激光原理

自由电子激光 (Free Electron Laser, 简称为 FEL) 是以相对论性电子束为放大介质、基于电磁辐射机制的相干光源。自由电子激光原理是 20 世纪 70 年代中期发展起来的, 1976 年, 美国的梅迪 (J.M.J. Madey) 博士等人首次在实验上证实了振荡器型低增益 FEL 的原理, 引起科技界极大的兴趣。20 世纪 80 年代, 科学家们提出了 SASE (Self Amplified Spontaneous Emission, 自放大自发辐射) 高增益自由电子激光原理 (图 1)。自由电子激光的基本思想在于电磁场辐射的相干叠加和放大。单个电子经过一块偏转磁铁发出的同步辐射谱大多是在一定范围内连续分布的, 通过合理地选择波荡器 (由一系列 N 和 S 磁极交替排列组成的磁铁阵列) 和电子束参数, 使各个电子的同步辐射在一定的波长上相干地叠加, 即可产生相干的辐射。在 SASE 工作模式下, 电子自己发出的同步辐射会对电子束本身进行密度调制, 在较长的波荡器中, 在电子束团内部微观尺度上会出现以辐射波长为周期的密度集中, 被称为微聚束, 这些周期性的电子集聚将导致辐射的相干叠加, 而这种更强的辐射会进一步加强这种集聚, 最后形成一个正反馈的过程, 从而使 FEL 相干辐射被指数放大直至饱和。FEL 的波长由电子束能量和波荡器周期长度决定, 能量越高或波荡器周期长度越短则辐射波长越短, 可以覆盖整个 X 射线波段区。

## 基于高增益原理的自由电子激光光源

SASE 高增益自由电子激光装置主要由电子枪、直线加速器和波荡器几个部分构成。如图 2 所示, 在该装置中, 电子枪用于产生低发射度的电子束, 电子束通过直线加速器加速到所需的能量, 并在中间适当的地方通过压缩系统缩短束团长度以获得所需的高峰值流强, 最后通过足够长的波荡器磁铁系统来放大

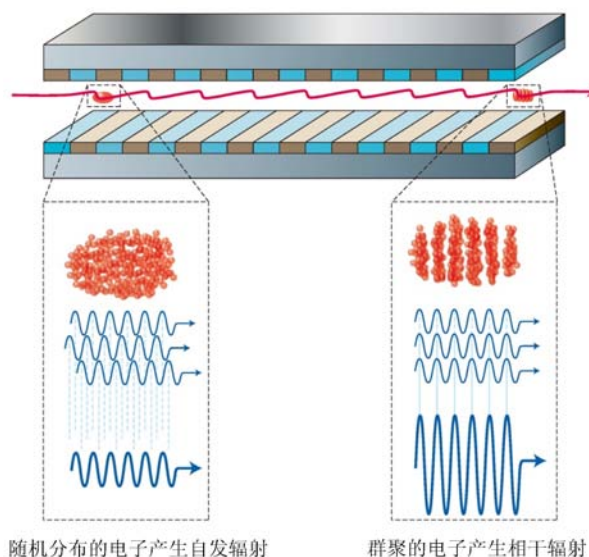


图 1 高增益 FEL 基本原理, B. W. J. McNeil and Neil R. Thompson, *Nature photonics*, 4, 814-821(2010)。(左: 非相干辐射, 电子束在辐射波长范围内随机分布; 右: 相干辐射, 电子束被集聚到间距为辐射波长的较小空间内)

产生高亮度的自由电子激光。20 世纪 90 年代以来, 随着高亮度光阴极电子枪技术的成熟以及束团压缩及束流品质控制技术的发展使短波长 SASE 变成可能。1996 年, 美国 UCLA (University of California, Los Angeles) 首次在可见光波段完成了 SASE 的实验验证, 包括指数增益及饱和等特性。2000 年, 美国阿贡国家实验室在 LEUTL 装置上成功实现了紫外波段 SASE-FEL (385nm) 输出。同年, 德国 DESY 的 TTF-FEL 实现了  $\sim 100$  nm SASE, 并于次年达到饱和功率输出并开始第一个用户实验。2006 年 3 月, DESY TTF- II (现称 FLASH) 的 13.1 nm SASE 出光, 两年后, FLASH

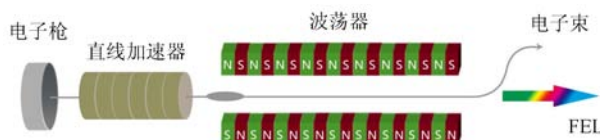


图 2 高增益自由电子激光装置构成 (赵振堂、王东, 《激光与光电子学进展》, 50, 080001 (2013))

实现 6.5 nm SASE 出光，将高增益 FEL 推进到了软 X 射线波段。

经过近 30 年持续不断的努力，2009 年，基于 SASE 高增益原理的美国直线相干光源 LCLS (Linac Coherent Light Source) 首次成功地实现了波长为 0.15 nm、脉冲能量为毫焦耳级、脉冲长度为飞秒级以及近 100% 空间相干性的硬 X 射线 FEL 的饱和出光，这标志着 FEL 正式进入了硬 X 射线时代。2010 年 10 月，FLASH 在能量提升的条件下，实现了 4.1 nm 水窗波段的软 X 射线自由电子激光。2011 年 6 月，日本 SPring-8 的 SACLA 成功实现了 0.06 nm SASE 出光，成为目前世界上波长最短的硬 X 射线激光。欧洲的 European XFEL 装置、瑞士的 SwissFEL 以及韩国的 PAL XFEL 装置目前都已进入建设阶段。

同时具备高空间分辨率、高时间分辨率和高能量分辨率的 X 射线 FEL 的出现，使现有的研究手段出现了跨越式发展，相关科学研究进入了一个全新的阶段。X 射线 FEL 飞秒的时间“透镜”将使人们可以捕捉到微观尺度下结构、功能及其转化过程的关联，这是诸多前沿学科特别是生命科学、信息科学、光化学、材料科学和环境科学等关注的目标。X 射线 FEL 的空间相干性，能使结构生物学研究突破现有的技术束缚，可以对生物大分子内部结构的变化过程进行 X 光的全息摄影，从而了解三维结构的动态演化过程，使蛋白质分子的结构解析以及功能相关的研究获得颠覆性的变革。X 射线 FEL 的超高功率密度，将引领科学家进入一个非线性高场强物理的全新领域。

### 全相干自由电子激光

高增益自由电子激光可分为非种子和种子型两类，基于自发辐射的非种子 SASE 自由电子激光时间相干性差、波长和强度稳定性方面存在天然的弱点，因此人们一直在试图通过以全相干种子激光调制电子束并使其在波荡器中进行辐射放大的机制 (seeded FEL) 来获得很好的时间相干性，即实现全相干自由电子激光。1996 年科学家们提出了自种子 (Self-seeding) 工作模式，先利用前一半波荡器产生的 SASE 自由电子激光 (辐射频谱不纯，光脉冲分布复杂多变，即纵向或时间相干性很差) 经过单色器进

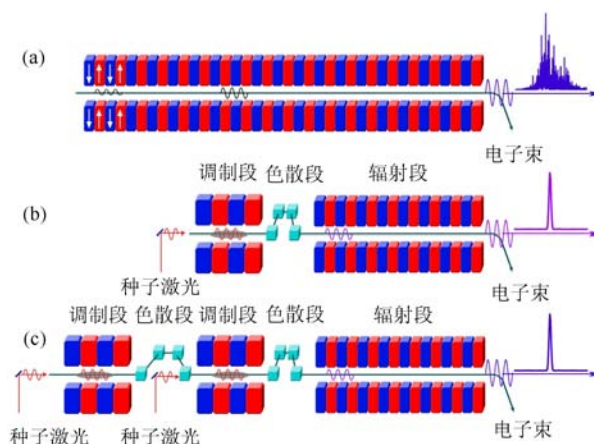


图 3 高增益自由电子激光的主要类型：(a) 自放大自发辐射 FEL，(b、c) 外种子型 FEL (Z. T. Zhao, et al., *Nature photonics*, 6, 360 ~ 363, 2012)

行滤波来产生带宽较窄的 X 射线辐射，然后用其作为种子在后一半波荡器中调制同一电子束放大产生自由电子激光，从而获得更纯的光谱特性。2012 年美国 LCLS 对自种子工作模式进行了实验验证，实验结果表明自种子工作模式可以大大减小输出光谱带宽。目前，自种子工作模式已被应用于光源用户实验。

另一种高增益自由电子激光原理，高增益高次谐波产生 HGHG (High Gain Harmonic Generation, 高增益谐波产生) (图 3 (b))，是由美国华裔物理学家余理华博士于 20 世纪 90 年代提出并完善的。HG HG 工作模式源于外种子激光对电子束的能量调制，其 FEL 输出的时间相干性明显优于 SASE 模式。21 世纪以来，传统激光技术及加速器技术的发展使得采用 HG HG 工作模式的自由电子激光成为可能。2000 至 2003 年，HG HG 工作模式在美国布鲁克海文国家实验室的 ATF 上首先得到验证，并在 SDL 装置上实现了 266 nm 的 FEL 饱和出光。2010 年意大利建成了基于 HG HG 的高增益自由电子激光用户装置——FERMI，并实现了 HG HG 工作模式下的 43 nm FEL 输出；2011 年实现了 20 nm 的 FEL 饱和输出，2013 年实现了 10.8 nm 级联 HG HG 的 FEL 的饱和输出，测量到的最短谐波辐射波长达到 4.3 nm。目前，FERMI 装置已全面面向用户开放。

为了进一步提高谐波转换效率，2009 年前后，美国 SLAC 的斯图帕科夫 (G. Stupakov) 博士提出了基

于双调制段波荡器回声机制的超高次谐波自由电子激光运行模式 (Echo-enabled Harmonic Generation, 简称 EEHG), 如图 3 (c) 所示。这种工作模式采用两级激光调制, 突出优势在于调制后电子束中含有丰富的高次谐波分量, 因此在引入较小的能量调制的情况下就可以产生较大的超高次谐波聚束, 这意味着 EEHG 具有产生更短 FEL 辐射波长的能力。EEHG 原理一经提出便得到了国际自由电子激光领域的高度关注。随后的几年间, 中国科学院上海应用物理研究所和美国 SLAC 国家实验室先后完成了 EEHG 原理和 FEL 出光放大的实验验证。

#### 我国高增益自由电子激光的发展状况

我国高增益自由电子激光的发展始于 20 世纪 90 年代末, 经过多年的技术积累和艰苦努力, 上海应用物理研究所在 2009 年建成了我国高增益自由电子激光综合研究平台——上海深紫外自由电子激光装置 (SDUV-FEL), 并于 2010 年 12 月中旬在 HGHG 模式下成功达到饱和。它使我国成为继美国之后世界上第二个实现 HGHG 自由电子激光放大与饱和的国家。2011 年 4 月, 上海深紫外自由电子激光装置上还实现了世界首个 EEHG-FEL 的出光放大, 并验证了 EEHG-FEL 输出光强及光谱的稳定性。2012 年 4 月, 还在 SDUV-FEL 上成功实现了世界首个两级级联 HGHG 的相干辐射输出。在新原理探索方面, 上海应用物理所自由电子激光研究团队还提出了级联 EEHG (EESHG) 以及相位汇聚高次谐波产生运行机制 (PEHG, Phase-merged Enhanced Harmonic Generation) 等新型自由电子激光工作模式。

目前, 我国正在建设两台外种子型高增益自由电子激光装置。一台是基于 0.84 GeV 电子直线加速器的级联型外种子 X 射线自由电子激光试验装置, 其输出波长小于 10 nm, 该项目已获得国家批准, 即将在中国科学院上海应用物理研究所上海光源园区开工建设, 预计于 2016 ~ 2017 年调束出光。另一台是在中国科学院大连化学物理研究所建设的极紫外波段 (波长 50 ~ 150 nm) 的全相干自由电子激光用户装置, 该装置由国家自然科学基金委资助, 预计将于 2017 年建成并开展用户实验。

#### X 射线自由电子激光晶体学发展

X 射线自由电子激光技术的发展为晶体学带来了崭新的机遇, 特别是对于过去几十年已经取得飞速发展的生物大分子晶体学研究。在生命科学领域, 生物大分子 (如膜蛋白、核糖体等) 的结构与功能研究是在分子水平上揭示生命现象的基础。一直以来, 研究生物大分子精细三维结构的主要方法是 X 射线晶体学, 即利用生物大分子晶体对 X 射线的衍射来解析生物大分子的三维空间结构。当前的 X 射线晶体学方法首先需要将生物大分子进行结晶, 得到晶体以后开展晶体衍射实验。生物大分子一般分子量较大, 分子间的相互作用较弱, 很难长成如小分子晶体那样的有序度很高的大晶体。生物大分子结晶在比较好的情况下, 可以得到几十到数百微米大小的晶体。对于那些结晶困难的生物大分子, 如膜蛋白分子、较大的蛋白质复合物分子等, 结晶十分困难, 常常只能得到较小尺寸的晶体, 例如几微米甚至纳米尺度的晶体。这就造成生物大分子晶体对 X 射线的衍射强度通常都很弱, 为了采集到高分辨及高信噪比的衍射数据, 需要有高亮度的 X 射线光源。第三代同步辐射装置利用波荡器光源可产生高亮度的 X 光光源, 极大地促进了生物大分子晶体学的发展。但是即便在目前的第三代同步辐射光源装置上, 可有效进行高质量生物大分子晶体衍射实验的晶体样品尺寸一般需要在 10 微米以上。对于一些具有重要意义的膜蛋白分子来说, 科学家获得这种尺寸的晶体样品的时间通常以数月或者年计, 到目前为止全世界也仅仅解析了 300 个左右的膜蛋白结构, 还有数以万计的膜蛋白结构有待测定。

由于自由电子激光具有的高亮度、高相干性以及飞秒脉冲时间结构的特点, 将其应用于生物大分子晶体学, 开创了一种新的晶体结构研究手段: 序列飞秒 X 射线晶体学 (SFX, serial femtosecond X-ray crystallography)。自由电子激光的单脉冲峰值强度可以达到  $\sim 10^{12}$  phs/pulse, 如此高的强度, 可以直接利用纳米尺度的生物大分子晶体样品来进行衍射数据采集。这就可以使生物学家不必将大量的时间花费在生长晶体样品上, 大大提高研究效率。但是伴随着高强度 X 光, 晶体的辐射损伤就是一个极为严重的问题。

传统的生物大分子晶体衍射实验，X 射线光源的光强较自由电子激光光源光强低得多，通过低温来保护晶体，降低晶体受到的辐射损伤，一颗晶体可以经受几十秒到几分钟的 X 光照射时间。而聚焦后的自由电子激光光束甚至可以将薄钢片打穿，对于生物大分子晶体来说，瞬间就可将其蒸发。但是科学家通过模拟计算发现，晶体损伤实际上还是有一个时间过程（图 4），只是这个时间过程是以飞秒计的。以合适的飞秒量级高强度 X 光短脉冲去照射晶体，就可以在生物大分子被辐射损伤破坏之前获得所需要的结构信息。自由电子激光恰好满足了这个苛刻的条件。

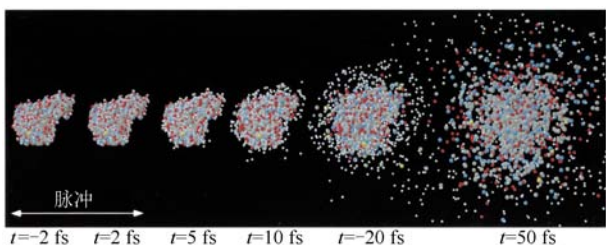


图 4 模拟计算出的溶菌酶分子在高强度 X 射线照射下的损伤

过程 (Neutze, R., et al, *Nature* 406, 752 ~ 757 (2000))

由于自由电子激光的高强度，微小的生物大分子晶体样品一经照射就会损坏。为了能够采集到足够的数据进行结构分析，需要对很多颗晶体（一般需要数万颗小晶体）进行照射采集数据。使用传统的晶体操作方法很难满足实验数据采集的需求。在 SFX 实验中样品的操作方法是利用一个几微米大小的喷头，将晶体样品连同缓冲液一起喷射出来。图 5 是众多类型喷头的一种，以此为例简单介绍其基本原理及功能。通过液体（水）来提供 300 psi 的压力挤压柱状活塞，再将压力传导至样品池。样品池内是由缓冲液及蛋白质晶体组成的样品。样品受到压力后，通过几微米至几十微米大小内径的毛细管射出。在毛细管外，还有一层共轴的气体，这是为了将喷射出来的蛋白质晶体样品包裹住，使其保持成直线流动而不至于散开。样品池内的样品在实验前，还必须先进行过滤，将过大的晶体颗粒滤除，过滤后的蛋白质晶体尺寸在几百纳米至几微米大小之间，以免堵塞毛细管。

2011 年在美国 LCLS 光源成功实现了第一个序列飞秒晶体学实验。实验设置见图 6。实验所用的样品是最大的膜蛋白分子复合物之一，photosystem I。晶

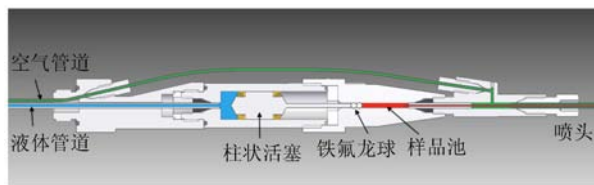


图 5 微米晶体（纳米晶体）喷射器（修改自 *Nat Commun.* 2014; 5: 3309. doi:10.1038/ncomms4309）

体样品和缓冲液一起通过一个 4  $\mu\text{m}$  内径毛细管，以 10 m/s 的速度垂直于入射自由电子激光光束方向流出。实验中采用了两个高速探测器，置于离样品 68 mm 和 564 mm 的地方，分别采集高角度及低角度的衍射数据。自由电子激光的脉冲频率是 30 Hz，光子能量为 1.8 keV，每个脉冲含有超过  $10^{12}$  个光子，每个脉冲的时间长度可以分别为 10、70 和 200 fs。最终的实验数据是利用 70 fs 的脉冲来采集。从实验结果来看，利用几百纳米至几微米大小的蛋白质晶体样品采集到的数据与利用传统的生物大分子晶体学采集的数据在相同分辨率下结果相当（图 7）。

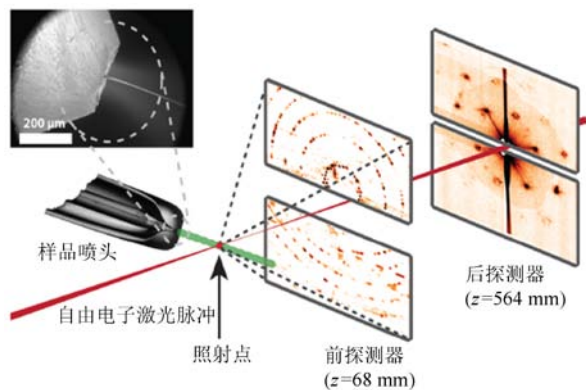


图 6 在 LCLS 上实现的第一个飞秒晶体学实验 (Henry N. Chapman., et al, *Nature* 470, 73 ~ 78 (2011))

随着第一个序列飞秒晶体学实验的成功实现，近几年出现了越来越多的成功例子。利用自由电子激光的特性，为生物大分子晶体学提供了一个新的结构解析手段。使得原来不可能利用的纳米尺度的蛋白质分子晶体现在也可以进行结构解析，同时 SFX 方法也不必对样品进行低温冷冻，可以更好地研究晶体在常温下的真实结构。当然，将自由电子激光应用到生物大分子晶体学上还在起始阶段，还有许多技术难题需要解决，例如样品消耗比较大、样品准备也比较繁琐、数据处理方法需要进一步发展，等等。

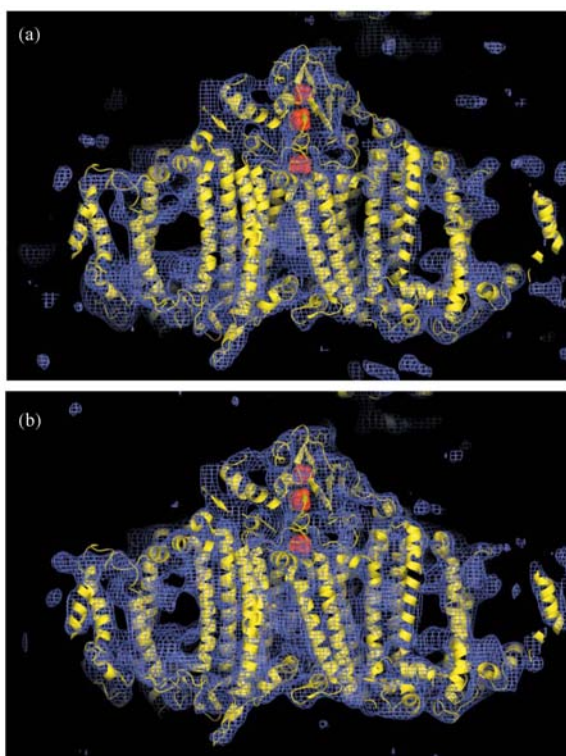


图7 利用SFX方法及传统的晶体学方法在相同分辨率下的结果比较。(a)图是SFX方法得到的电子密度图,(b)图是在100 K低温下使用传统的同步辐射光源得到的电子密度图。SFX方法得到的结果与传统的方法十分接近(Henry N. Chapman., et al, *Nature* 470, 73 ~ 78 (2011))

### 展望

自由电子激光正在向全相干、超高功率、小型化和连续波等方向发展,其光束线和实验站设备及其实验方法也在不断的发展和完善之中。自由电子激光除

了在序列飞秒晶体学实验方面具有重要应用外,还在其他两方面对X射线晶体学有着重要促进作用。一个是生物大分子晶体时间分辨研究,利用自由电子激光的高强度及飞秒级的脉冲,结合高速探测器,解析蛋白质分子晶体在反应过程中的结构变化,揭示蛋白质分子的动态反应机理。另一个是利用自由电子激光的高相干性,从纳米尺度的晶体采集衍射数据,利用相干衍射成像的方法来解决相位问题。在20世纪,基于同步辐射的X射线晶体学对生命科学的发展产生了巨大的影响。21世纪,自由电子激光又将为X射线晶体学注入新的活力。

基于X射线自由电子激光的晶体学发展把微小蛋白质晶体结构测定的限度从微米尺度推进到了纳米尺度,这一大步跨越对于结构生物学发展的巨大推动作用将随着时间不断显现。X射线自由电子激光的优良时间特性,对于我们进一步理解自然界的瞬间过程,更是无法替代的变革性手段,这将是自由电子激光应用的一个主要方向。X射线自由电子激光的梦想,是直接观察真实状态下原子分子的结构与变化,直至单个原子分子,而不再借助把原子、分子堆砌成晶体。那一天的到来或许意味着利用晶体学进行结构测定的终结,但这正是X射线自由电子激光及其晶体学追求的“终极”目标。百年晶体学发展已经为人类认识自然做出了突出的贡献,可以相信,未来几十年晶体学的新发展必将做出更大的贡献。

### 科苑快讯

#### 大西洋深处隐藏着地球失去的热量

现在,对于地球变暖出现停滞有了新解释。尽管温室气体在大气层中不断积累,但是地球表面平均气温却在2000年以来保持稳定,原因不得而知。许多科学家相信,答案就是太平洋将大量冷水发送到海面,帮助地球降温。但是发表在《科学》(*Science*)网站上的研究论文提出,海水温度数据表明大多数失去的热量都储存在大西洋深处。

研究者汲取了1970年以来全球数千万浮标、船只的海水温度及盐度的测量数据,涵盖从海面到1500

米深处的24个不同深度,这意味着太平洋持续吸收热量至少在10年以上,大大缓解了地表变暖。文中写道,在过去的14年里,西北太平洋300米以下存储的能量高于全球其他海域的总和。作者之一、青岛中国海洋大学的海洋学家陈显尧(Xianyao Chen)说,“我们找到了失去的热量”。他与合著者、美国西雅图市华盛顿大学(University of Washington)的董家杰(Ka-Kit Tung)认为,“传送带”洋流将盐度较高的热带海水输送到北太平洋,携带热量沉入海底。

(高凌云编译自2014年8月21日www.sciencemag.org)