

“大连相干光源”为化学反应中的分子“拍电影”

孙洋, 张未卿, 杨学明

中国科学院大连化学物理研究所, 大连 116023

摘要 自由电子激光被称为第4代先进光源,是帮助人类探索物质微观世界的最先进的研究工具,在能源、物理、化学、材料、生物等多个学科领域具有变革性的推动作用。基于可调极紫外相干光源的综合实验研究装置(简称“大连相干光源”)的成功研制,填补了中国在这一领域的空白,有望成为推动中国科技实现跨越式发展的“利器”。介绍了大连相干光源的研制背景和国内外的发展现状,阐述了装置成功研制的意义,并展望了未来的应用前景。

关键词 自由电子激光;极紫外;大连相干光源;超级闪光灯

2018年7月12日,由国家自然科学基金委资助,中国科学院大连化学物理研究所和上海应用物理研究所联合研制的“基于可调极紫外相干光源的综合实验研究装置”(简称“大连相干光源”)顺利通过验收。这是中国第一台自由电子激光大型用户装置,是世界上唯一工作在极紫外波段的自由电子激光装置,也是世界上最亮的极紫外光源,单个脉冲长度为皮秒(10^{-12} s)或百飞秒(10^{-11} s)量级,包含超过100万亿(10^{14})个光子,波长可在整个极紫外区域(50~150 nm)完全连续可调,具有完全的相干性,将成为推动中国相关领域科技发展的非常独特

的研究工具。

1 自由电子激光的发展现状及科学意义

激光是20世纪人类最伟大的发明之一,被称为“最快的刀、最准的尺、最亮的光”。其中,自由电子激光(free-electron laser, FEL)是较晚加入激光家族的成员,诞生于20世纪70年代^[1-2],通常由加速器、波荡器和光束线站等3部分组成(图1^[3]),工作原理是将高品质相对论自由电子束通过周期性

收稿日期:2018-11-16;修回日期:2018-12-25

基金项目:国家自然科学基金项目(L1524017)

作者简介:孙洋,高级工程师,研究方向为基于大型先进光源的学科发展战略,电子信箱:ysun@dicp.ac.cn

引用格式:孙洋,张未卿,杨学明.“大连相干光源”为化学反应中的分子“拍电影”[J].科技导报,2019,37(21):26-31;doi:10.3981/j.issn.1000-7857.2019.21.003

变化的磁场从而受激辐射产生电磁波(图2^[3])。其特点是激光波长和脉冲结构可以根据需要进行设计,峰值亮度比第3代同步辐射光源高8~10个量级,光脉冲短3个量级,相干性提高3个量级以上,被公认为“第4代先进光源”。

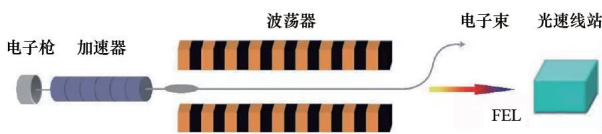


图1 自由电子激光的基本构成
Fig. 1 Basic construction of FEL

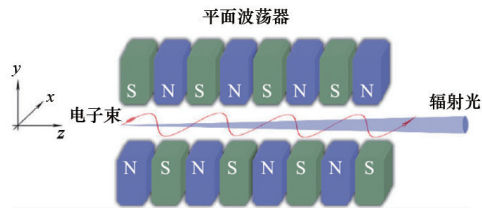


图2 电子束在波荡器中运动产生相干辐射
Fig. 2 Electron beams move in the undulator to produce coherent radiation

20世纪80年代,自由电子激光器一度成为美国“星球大战”相关武器计划中的最有希望的候选者,从而推动了该领域的飞速发展。近年来,自由电子激光技术由低能量、长波长的低增益模式(主要工作在太赫兹、中远红外和可见光区域),发展到如今更为先进的高能量、短波长的高增益模式(主要工作在紫外、X射线区域),工作模式包括无种子激光的自放大自发辐射^[4](self-amplified spontane-

ous emission, SASE)、种子激光驱动的高增益高次谐波放大^[5](high-gain harmonic generation, HHG)和回声高次谐波放大^[6-7](echo-enabled harmonic generation, EEHG)3种类型,且都得到了实验验证。为了抢占国际最高科技顶峰,世界各科技强国均将高增益自由电子激光的发展列为其未来科技发展计划的重要内容并予以优先支持和实施。2006年3月,德国的电子同步辐射加速器(deutsches elektronen-synchrotron, DESY)的TESLA测试设备TTF(tesla test facility)升级为用户装置FLASH(free-electron laser in hamburg),实现了13.1 nm SASE出光^[8],2年后,FLASH又实现6.5 nm SASE出光^[9],将高增益FEL推进到了软X射线波段;2009年4月,美国直线加速器相干光源(linac coherent light source, LCLS)实现了0.15 nm的SASE出光^[10],标志着FEL正式进入了硬X射线时代,目前正在研制更为先进的高重复频率自由电子激光装置LCLS-II;2011年6月,日本的SACLA(spring-8 angstrom compact free electron laser)成功实现了0.06 nm SASE出光^[11],成为目前世界上波长最短的硬X射线激光;意大利的FERMI^[12]、韩国的PAL FEL^[13]、瑞士的Swiss FEL^[14]、欧盟的European XFEL^[15]等装置也均于近年相继建成出光。中国除了“大连相干光源”以外,另有2014年启动的“软X射线自由电子激光”(SXFEL)和2018年启动的“硬X射线自由电子激光”(SHINE)等装置,目前正在建设中。国际上目前运行和在建的高增益自由电子激光装置的主要参数见表1。

表1 国际上高增益自由电子激光装置的主要参数
Table 1 Key parameters of high-gain FELs around the world

装置名称	优势波段	所属国家	加速器类型	电子束能量/GeV	光子能量/keV	重复频率/Hz	出光时间
FLASH	软X射线	德国	超导	1.25	0.014~0.3	10	2005
LCLS	硬X射线	美国	常温	14.3	1~15	120	2009
SACLA	硬X射线	日本	常温	8	0.44~20	60	2011
FERMI	软X射线	意大利	常温	1.5	0.0124~0.3	10	2011
PAL FEL	硬X射线	韩国	常温	10	0.124~12.4	60	2016
Swiss FEL	硬X射线	瑞士	常温	5.8	0.177~12.4	100	2016
DCLS	极紫外	中国	常温	0.3	0.008~0.025	50	2017
European XFEL	硬X射线	欧盟	超导	17.5	8.4~30	2.7万	2017
SXFEL	软X射线	中国	常温	1.5	0.1~0.6	50	2019
LCLS-II	硬X射线	美国	超导	4	0.2~5	100万	2021
SHINE	硬X射线	中国	超导	8	0.4~25	100万	2024

由于自由电子激光具有超高亮度、超短脉冲、全相干等优异特性,大大提高了实验研究的时间和空间分辨率。借助这些优异性能,科学家发展了超快实验技术、光谱学及电离探测技术、散射及成像技术等新型实验方法。这些方法可以帮助人们在全新的时间尺度和空间尺度上理解自然过程,特别是直接观测到电子的动态过程、分子结构及演化和物质相变等现象,从而彻底开辟一个从未被探索的世界。例如,Nilsson 研究组^[16]利用美国 LCLS 光源,将一氧化碳和氧原子放在钨催化剂表面并进行激发,观测了在飞秒时间尺度内原子内电子分布的变化,即化学键形成的迹象,这是人类首次通过实验观测到化学键产生的过程。又如,Redecke 等^[17]利用美国的 LCLS 光源,采用独特的串行飞秒晶体学(serial femtosecond crystallography, SFX)技术,揭开了近自然/生理状态下的布氏锥虫蛋白质三维结构。布氏锥虫是一种可以导致非洲睡眠病的单细胞寄生虫,每年大约有 3 万人死于非洲睡眠病,科学家有望据此开发出有效的药物,封闭这种蛋白质的活性,杀死布氏锥虫。该研究成果被美国《Science》杂志评为 2012 年度十大重大突破之一。

2 “大连相干光源”的研制过程

世界上目前运行的高增益自由电子激光装置都集中在 X 射线区域(表 1)。在“大连相干光源”建成以前,还没有一台工作在极紫外区域的自由电子激光用于科学研究。极紫外区域光源是探测分子、原子及其外壳层电子结构最重要的光子能量区域,是对分子进行激发和软电离最有效的光源,有助于科学家在分子水平上开展一系列重大科学问题研究,对于能源、化学、物理、材料等领域具有显著的推动作用。因此,极紫外自由电子激光的发展得到了世界上相关领域专家的高度关注。

基于这样的认识,2011 年,由杨学明(图 3)、赵振堂、王东领导的中国科学院大连化学物理研究所和上海应用物理研究所相关专家组成的联合研发团队提出了在中国率先建设基于新一代极紫外高增益自由电子激光(“大连相干光源”)综合实验装

置的计划。这一项目通过了中国科学院推荐申请,经过严格评审之后,于 2012 年获得了国家自然科学基金委国家重大科学仪器研制项目的立项资助,资助金额 1.03 亿元。项目启动后,联合研发团队专家精诚合作,对国际上自由电子激光装置开展了详细调研,并于 2013 年 12 月确定了最终技术方案。

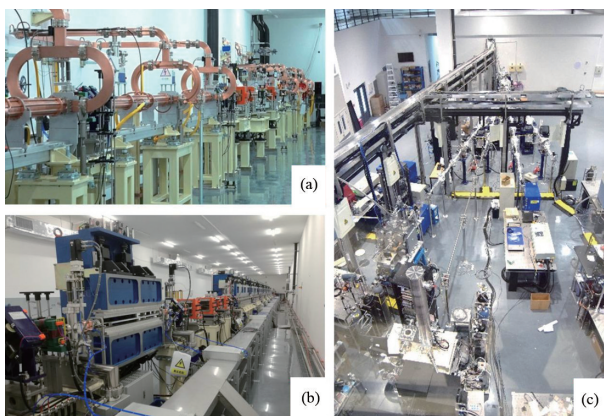


图3 杨学明

Fig. 3 Yang Xueming

2014 年 10 月,“大连相干光源”实验楼正式破土动工。2016 年 9 月 24 日,在不到 2 年的时间里,项目组完成了主要基建工程和主体光源装置的研制,并实现了光源装置的首次出光,创造了同类大型科学装置建设的新记录。之后,经过研发团队数月卓有成效的调试,“大连相干光源”相继成功实现了自由电子激光 SASE 和 HGHG 的饱和输出。该装置可以在整个极紫外波段(50~150 nm)实现波长连续可调,重复频率达到 50 Hz,种子激光在 1 ps 级和 100 fs 级两个工作模式下切换。此外,“大连相干光源”研发团队还在世界上首次在种子型自由电子激光中采用了“taper 波荡器”技术,使得 HGHG 模式的极紫外激光脉冲峰值功率达到了 210 μJ ,是设计指标的 2 倍。该装置中 90% 的仪器设备由中国自主研发,标志着中国在该领域的相关技术已达国际先进水平,有望引领全球极紫外自由电子激光及相关领域的发展。“大连相干光源”主体光源装置如图 4 所示。

在首批光束线站中,“大连相干光源”共建设了表面光化学反应实验、分子束-表面散射实验和基元化学反应实验等 3 个研究装置,分别可以用于开展表面化学和催化反应机理、分子与表面相互作用



(a) 加速器; (b) 波荡器; (c) 光束线站

图4 “大连相干光源”主体光源装置

Fig. 4 Main units of DCLS

过程中的断键成键过程和重要基元化学反应的过程和机理等研究工作。未来,“大连相干光源”将计划在现有加速器基础上,增加第2条波荡器系统,从而将用户时间增加1倍,可同时提供不同性能的极紫外激光,开展更为广泛的科学研究。

3 “大连相干光源”的应用领域

“大连相干光源”是一台采用高增益谐波放大运行模式的极紫外自由电子激光用户装置,是一种以相对论高品质电子束作为工作介质,在周期磁场中以受激发射方式放大电磁辐射的新型强相干激光光源。“大连相干光源”被形象地喻为“照亮物质微观世界的超亮超快的闪光灯”,这一“闪光灯”可准确地捕捉到分子、原子等微观粒子在化学反应中的动态影像,实现了从为分子、原子“拍照片”到“拍电影”的跨越,这在以往是难以想象的。结合传统激光技术以及离子成像技术,“大连相干光源”将发展新的原子、分子和自由基灵敏度的电离以及其他特殊的探测方法,在如下领域中具有重要的应用前景。

1) 燃烧化学:利用单光子电离方法,灵敏探测燃烧过程中的重要产物和中间体,阐明燃烧过程中的化学机理。

2) 表面催化化学:结合现代表面科学技术,研究能源相关的重要催化反应过程的机理和动力学,

有助于推动新型高效催化剂的发展。

3) 团簇结构与动力学研究:结合红外激光技术,获得常规方法难以得到的中性团簇振动光谱和动力学信息,从而解析了团簇的精细结构和动力学过程。

4) 大气雾霾化学研究:利用极紫外软电离技术,发展高灵敏度的单颗粒气溶胶质谱和成核机理研究装置,解析大气中性团簇的精细结构,揭示大气中气溶胶的成核动力学机制。

5) 分子反应动力学:与现代激光技术相结合,发展一系列新的实验探测方法,开展重要基元化学反应和光化学反应的动力学研究。

目前,科研人员利用“大连相干光源”,在水分子研究方面取得新进展。水是人类重要的生命元素,水无时无刻不在影响着自然界的各类活动,人类生存和社会发展都离不开水。尽管水分子的化学组成简单,仅由1个氧原子和2个氢原子组成,但其存在很多反常的性质,且人类对其在物理、化学和生物过程中的作用机理知之甚少,例如氢键的构成等。利用“大连相干光源”,科研人员对水分子在极紫外波段的光解动力学进行了系统性研究,发现了罕见的三体解离过程和高振转分布的产物 $\cdot\text{OH}$ 自由基,这些发现将帮助人类理解星际中 $\cdot\text{OH}$ 自由基的产生和能级分布。此外,结合红外光谱技术,科研人员首次测得水中性团簇(三聚体、四聚体、五聚体)的红外光谱,获得团簇的结构信息,深入解析了水中氢键的构成,对于理解空气中水分子的聚集过程(雾霾过程的重要部分)具有重要意义。

除此之外,“大连相干光源”团队已经与国内外多个领域的科学家展开了广泛合作。例如,中国科学院生态环境研究中心束继年研究团队计划在“大连相干光源”建立专门研究雾霾成因的气溶胶实验站,主要分析大气化学中中性团簇的精细结构,揭示气溶胶的成核动力学机制,以期能够更深入地理解雾霾成因;中国科学技术大学胡水明和卢征天团队计划利用“大连相干光源”高亮度的极紫外激光结合原子阱痕量分析技术进行稀有放射性同位素的灵敏探测,从而开展地下水、冰川样品和其他环境水样品的测年工作,该方法是 ^{14}C 方法的有力补

充;上海交通大学齐飞计划利用“大连相干光源”,更加细致地研究燃烧过程,充分了解发动机燃烧过程中复杂的流体反应体系,从而实现先进发动机的高效率燃烧和低污染排放。不仅在中国,“大连相干光源”在国际科技界也受到了广泛关注。例如,英国皇家学会会士、著名化学动力学专家、英国 Bristol 大学 Mike Ashfold 已经在“大连相干光源”开展了部分实验工作,重点进行星际化学方面的研究,成为首个国际用户;德国哥廷根大学 Alec Wodtke(兼马普协会 Fritz Haber 研究所所长)已经在德国申请到 200 万欧元资金,计划在“大连相干光源”建立表面化学研究实验站,主要研究能源转化过程中的催化机制结合光源和分子束技术,有望深入揭示分子与表面之间的化学反应及传能机理,推动新催化机理的产生。

4 展望

为了解决自由电子激光普遍存在的重复频率较低从而导致实验效率较低、机时紧张等问题,研发团队又一次提出了建设一台更为先进的基于超导加速器技术的高重复频率自由电子激光装置(简称“大连先进光源”)的计划,其重复频率将达到国际上最为先进的 100 万 Hz(美国正在升级改造的 LCLS-II 和中国正在建设的 SHINE 都属于这一类型的装置),将有效提升实验数据采集效率,满足更多用户的机时需求。该项目已获得大连市政府的资助,即将启动预制研究,并将积极争取国家的立项支持。届时,“大连相干光源”和“大连先进光源”将共同打造成为世界上独一无二的光子科学中心,大大提升中国在先进光源领域的国际影响力,并更加有力地推动中国能源、化学、物理、生物、环境等诸多基础科学的发展,为中国的科技创新注入更加强大的活力。

参考文献(References)

[1] Madey J. Stimulated emission of Bremsstrahlung in a periodic magnetic field[J]. Journal of Applied Physics, 1971,

42(5): 1906–1913.

[2] Ellias L R, Fairbank W M, Madey J M J, et al. Observation of stimulated emission of radiation by relativistic electrons in a spatially periodic transverse magnetic field[J]. Physical Review Letters, 1976, 36(13): 717–720.

[3] 赵振堂, 冯超. X 射线自由电子激光[J]. 物理, 2018, 47(8): 481–490.

Zhao Zhentang, Feng Chao. X-ray free electron laser[J]. Physics, 2018, 47(8): 481–490.

[4] Kondratenko K, Saldin E. Generating of coherent radiation by a relativistic electron beam in an undulator[J]. Particle Accelerators, 1980(10): 207–216.

[5] Yu L. Generation of intense UV radiation by subharmonically seeded single-pass free-electron lasers[J]. Physical Review A, 1991, 44(8): 5178–5193.

[6] Stupakov G. Using the beam-echo effect for generation of short-wavelength radiation[J]. Physical Review Letters, 2009, 102(7): 074801.

[7] Xiang D, Stupakov G. Echo-enabled harmonic generation free electron laser[J]. Physical Review Special Topics-Accelerators and Beams, 2009, 12(3): 030702.

[8] Ackermann W, Asova G, Ayvazyan V, et al. Operation of a free-electron laser from the extreme ultraviolet to the water window[J]. Nature Photonics, 2007, 1(6): 336–342.

[9] Schreiber S, Faatz B, Honkavaara K. Operation of FLASH at 6.5 nm wavelength[C]. Proceedings of the 2008 European Particle Accelerator Conference, 2008: 133–135.

[10] Emma P, Akre R, Arthur J, et al. First lasing and operation of an angstrom-wavelength free-electron laser[J]. Nature Photonics, 2010, 4(9): 641–647.

[11] Ishikawa T, Aoyagi H, Asaka T, et al. A compact X-ray free-electron laser emitting in the sub-angstrom region [J]. Nature Photonics, 2012, 6(8): 540–544.

[12] Allaria E, Castronovo D, Cinquegrana P, et al. Two-stage seeded soft-X-ray free-electron laser[J]. Nature Photonics, 2013, 7(11): 913–918.

[13] Kang H S, Min C K, Heo H, et al. Hard X-ray free-electron laser with femtosecond-scale timing jitter[J]. Nature Photonics, 2017, 11(11): 708–713.

[14] Milne C, Schietinger T, Aiba M, et al. Swiss FEL: The Swiss X-ray free electron laser[J]. Applied Sciences, 2017, 7(7): 720.

[15] Weise H, Decking W. Commissioning and first lasing of the European XFEL[C/OL]. 38th International Free Electron Laser Conference. Santa Fe, NM, USA, August 20–25, 2017: 9–13. <http://accelconf.web.cern.ch/AccelConf/>

fel2017/papers/moc03.pdf.

- [16] Öström H, Öberg H, Xin H, et al. Probing the transition state region in catalytic CO oxidation on Ru[J]. Science, 2015, 347(6225): 978–982.

- [17] Redecke L, Nass K, DePonte D, et al. Natively inhibited Trypanosoma brucei cathepsin B structure determined by using an X-ray laser[J]. Science, 2013, 339(6116): 227–230.

Dalian Coherent Light Source: Make a movie for molecules during chemical reaction

SUN Yang, ZHANG Weiqing, YANG Xueming

Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian 116023, China

Abstract Free electron laser (FEL), called the fourth advanced light source, is the most advanced experimental device to explore the microscopic world. It has a transformative driving effect on many subjects, such as energy, physics, chemistry, materials, biology, etc. With the successful research of "comprehensive experimental research equipment based on tunable EUV coherent light source (Dalian Coherent Light Source, DCLS)", China's vacancy in this area has been filled. DCLS could be expected to be the edge tool to promote the development of science and technology in China. This paper briefly reviews the research background of DCLS and the development status of FEL at home and abroad, then states the significance of the successful research of this equipment, and finally highlights its application prospect.

Keywords free electron laser; extreme ultraviolet; Dalian Coherent Light Source; super flash ●



(责任编辑 王志敏)

