X-선 자유전자레이저를 활용한 X-선 회절

DOI: 10.3938/PhiT.24.041

노 도 영

X-ray Diffraction Based on X-ray Free Electron Lasers

Do Young NOH

With the advent of the X-ray free electron laser, coherent high-flux X-ray femto-second pulses are available to researchers for the first time in human history. In this article, we review the characteristics of X-ray free electron lasers and the possible scientific applications based on such advanced X-ray sources.

들어가는 글

X-선은 응집물질을 이루는 원자들 간의 거리 수준의 파장을 가지고 있어서 다양한 물질의 원자 혹은 분자 구조를 밝혀내는데 있어서 가장 유효한 연구도구로 활용되어 왔다. 그럼에도 불구하고 그동안 방사광(synchrotron)을 포함한 모든 X-선 광원은 결맞음성(coherency)이 없는 incoherent한 광원이었고, 이로 인해 그 응용성이 제한되어 왔다. 가시광 영역에서 백열전구에서 나오는 빛이 레이저포인터에서 나오는 레이저 빛에 비해 성능이 제한되어 있는 것처럼 2010년대 이전의 모든 X-선 광원은 파장은 짧지만 백열등과 같은 incoherent한 광원이었다.

2010년 전후 과학계는 X-선 연구분야에 있어서 새로운 전기를 맞게 되었다. 소위 말하는 'X-선 자유전자레이저(X-ray Free Electron Laser: XFEL)' 기술의 성공으로 원자 간격 수준(~ 0.1 nm)의 짧은 파장을 가지면서 시간적으로는 펨토초(10^{-15} 초)에 이르는 펄스 형태의 coherent 광원인 '극초단 X-선 레이저' 형

저자약력

노도영 교수는 MIT에서 박사학위를 취득하고(1991년) 광주과학기술원 물리광학과 교수로 재직 중이다. 극한광응용기술 국가핵심연구센터(NCRC) 소장을 역임하였고, 현재 극미세 초고속 X-선과학 연구센터(SRC)의 센터를 운영하고 있다. XFEL응용 연구를 포함한 다양한 방사광 X-선 활용 연구를 수행하고 있다. (dynoh@gist.ac.kr)

태의 새로운 연구도구를 보유하게 된 것이다. X-선 레이저 특히 극초단 펄스 형태의 광원의 등장으로 인류는 최초로 원자 수준의 극미세 세계의 초고속 현상을 탐지할 수 있는 방법을 보유하게 되었고 새로운 과학을 창조할 수 있는 기회를 가지게 되었다. XFEL은 장파장 영역에서 레이저와는 달리 레이징에 필요한 매질과 cavity가 부재한 X-선 파장 영역에서의 레이징이라는 도전적인 기술이었으나 기대 이상의 성공을 가져왔고 이와 관련하여 기존의 방사광가속기도 이론적 회절 한계에 이르는 X-선 광원으로 발전하고 있다. '레이저 특성을 가진 X-선 광원'은 X-선이 발견된 1900년대와 또 레이저가 발견된 1960년대 이루어진 경이적인 과학과 기술의 발전 경험으로 미루어 볼 때 2010년 이후 미래 과학기술에 중요한 한 축을 담당할 것으로 기대되고 있다. 세계적으로 XFEL의 가동 현황을 보면 미국에 LCLS(Linac coherent light source)와 일본의 SACLA(SPring-8 Angstrom Compact free electron LASer)가 가동 중에 있고, 우리나라에서 PAL-XFEL이 건설 중에 있다.

X-선 자유전자레이저의 특징

고전 전자기학에서 잘 알려진 것처럼 전자가 가속운동을 하면 빛이 발생한다. 자석의 극이 주기적으로 교차되어 있는 언듈레이터(undulator) 구조에서 빛의 속도에 근접한 속도를 가진 전자가 가속될 때 빛이 발생하는데, 상대론적인 도플러 효과로 인해 실험실 프레임에서는 X-선 영역의 파장을 갖는 빛이 전달된다. 이때 실험실에서 활용 가능한 정도의 휘도(flux)를 갖는 X-선을 발생하기 위해서는 다수의 전자가 언듈레이터에서 가속운동을 해야 하는데 전자들이 제각각 다른 시점에 운동을 하므로 언듈레이터 X-선은 원리적으로 위상이 제각각인 빛들이 혼재된 incoherent한 빛이다. X-선자유전자레이저 발생은 전자들이 각 전자가 발생한 빛에 의해 다시 가속을 받는다는 것에 기초한다. 전자의 운동은 가속시키는 전자기파와 연동되어 있으므로 전자들이 발생시키는 빛에 의해 전자들의 운동이 서로 연동될 수 있는 것이다. 이 전자기파가 충분히 강할 때 전자들은 자발적으로 전자기파의 위상에 맞는 마이크로 군을 이루고 마이크로 군을

Fig. 1. Schematic illustration the motion of electrons and SASE principle.(from Ref. [1])

Fig. 2. History of X-ray sources and increase of X-ray flux. The bright spot in the in-set is XFEL beam and the background is undulator radiation.

이런 전자들이 같은 위상의 전자기파를 발생하며 X-선 빛을 증폭하는 SASE(self amplified spontaneous emission)이 XFEL의 원리이다.

XFEL에서 발생된 X-선은 기본적으로 공간적(transverse)으로 거의 완벽한 coherence를 가지고 있는 레이저 광이다. 따라서 X-선 빔 내부의 어떠한 두 점을 취해도 두 점에서 X-선의 위상은 일정한 상호 연관관계를 가지며, 물질을 이 X-선에 노출시키면 물질을 이루는 전자에 의해 산란된 X-선은 완벽한

간섭성을 가진다. 하지만 시간적 coherence는 현재 가동되고 있는 XFEL에서는 아직 완벽하지 못하다. 아직까지는 X-선이 완벽한 단색광이 아니고 일정한 에너지 대역, ($\Delta E/E \sim 10^{-3}$)을 가지고 있는 부분적인 coherent한 광원이라고 할 수 있다. 현재 longitudinal coherence라고 불리는 시간적 coherence는 미래 XFEL이 성능이 개선되면서 가장 많이 기대되는 부분이 시간적 coherence라고 할 수 있다.

XFEL은 기본적으로 펄스 광원이다. 전자빔 조절 기술이 점점 발달하면서 10여 펨토초(10^{-15} 초) 영역의 펄스폭을 가진 X-선 레이저 빔의 발생이 가능해졌고, 이 펄스 폭 역시 아토초(10^{-18} 초) 영역으로 개선될 것으로 기대된다. XFEL 펄스의 휘도(단위시간당, 단위면적당 X-선 광자의 개수)는 전자빔 군에서 발생하는 빛의 간섭성과 펄스성으로 인해 매우 크다. XFEL은 옆의 표에서 보여진 것처럼 기존의 제 3세대 방사광가속기에 비해 약 10억 배 이상 높은 휘도를 가진 강력한 광원이다. 인셋에 보이는 것처럼 기존의 방사광에서 활용하는 undulator radiation은 XFEL 빛의 백그라운드 정도로 볼 수 있다.

Coherent X-선 회절 이미징

전자 1개에 의한 X-선 산란 cross-section이 약 10^{-24} cm^2 정도로 X-선과 물질의 상호작용은 매우 작으므로 X-선 회절 패턴은, 1차 산란인 Born 근사를 사용하여 설명할 수 있다. 이 근사에 따르면, X-선 회절패턴은 시편을 이루고 있는 전자 밀도의 푸리에 변환(Fourier transform)의 제곱으로 기술된다.

$$S(\vec{q}) = \left| \int \rho(\vec{r}) e^{-i\vec{q} \cdot \vec{r}} \right|^2 \quad (1)$$

기존에는 coherent한 X-선 광원이 없었으므로 지금까지 대부분의 X-선 회절실험은 incoherent X-선 광원을 활용하여 진행되어 왔다. Incoherent X-선을 사용하면 시편의 모든 부분에서 산란되는 X-선이 상호 간섭을 일으키지 못하고, coherent volume 내에서 일어난 간섭무늬의 양상을 평균값이 측정값이 된다. 이는 incoherent 광원은 많은 coherent volume의 합이라고 생각할 수 있기 때문이다.

$$S(\vec{q}) = \sum_{\text{all volume}} \left| \int_{\text{coherent volume}} \rho(\vec{r}) e^{-i\vec{q} \cdot \vec{r}} \right|^2 = \left\langle \left| \int_{\text{coherent volume}} \rho(\vec{r}) e^{-i\vec{q} \cdot \vec{r}} \right|^2 \right\rangle_{\text{Average}} \quad (2)$$

REFERENCES

- [1] B. W. J. McNeil and N. R. Thompson, Nature Photonics 4, 814 (2010).

X-선 회절 실험 결과의 분석은 대부분의 경우 모델을 세우고 X-선 회절패턴을 fitting을 통하여 분석하여 $\rho(\vec{r})$ 에 대한 부분적인 정보만을 얻어내는 것으로 진행된다. 회절패턴이 양상을 평균 값이므로 이를 사용하여 원자구조의 공간상의 통계적인 분포인 density-density correlation 함수를 얻을 수 있고 이를 통하여 원자 간의 거리, 물질의 상태도, 결합의 통계적 성질 등 원자 스케일의 다양한 정보를 통계적으로 얻을 수 있지만, 시편의 전자밀도를 직접적으로 이미징하는 데에는 커다란 한계점이 있다.

반면 XFEL은 coherent한 X-선을 제공하므로 XFEL 빔에 의해 회절된 패턴은 식 (1)에서 주어지는 것처럼 X-선이 조사되는 부분의 전자밀도의 직접적이고 순간적인 푸리에 변환이다. 그러면 회절패턴으로부터 전자밀도를 도출하는 것이 가능한 것일까? 문제점은 X-선 산란을 통하여 측정된 것이 전자밀도의 푸리에 변환 자체가 아니고 그 제곱이라는 점이다. 따라서 위상정보는 측정하는 과정에서 잃어버리게 되고 단지 크기만 측정하게 되므로 푸리에 역변환에 필요한 정보가 부족하게 된다.

Coherent X-선 회절 이미징의 두 번째 단계는 이 잃어버린 위상을 복원하는 것이다. 이는 원리적으로 불가능하다고 생각할 수도 있지만 시편의 전자밀도에 대한 일부 정보를 정확히 안다면, 나머지 부분의 위상은 회절패턴으로부터 복원할 수가 있다. 예를 들어 크기가 L 인 일차원 시편에 대하여 L/N 의 해상도를 가지고 이미징할 경우를 생각해 보자(N : 정수). 이미징을 하는 것은 시편을 N 등분해서 크기가 L/N 인 각 셀의 전자밀도를 알아내는 것이다. 이 시편으로부터의 회절 패턴의 제공은 다음과 같이 주어진다.

$$|F(\mathbf{k})| = \left| \sum_{l=0}^{N-1} \rho\left(\frac{L}{N}l\right) e^{2\pi i \mathbf{k} \cdot \mathbf{L}l/N} \right| \quad (3)$$

만약 우리가 역격자 공간에서 시편의 크기(L)에 의하여 정의되는 Nyquist frequency $2\pi/L$ 의 정수배 즉 모든 $k_m = \frac{2\pi}{L}m$ 에서 측정한다면 우리는 N 개의 정보를 알 수 있다. 하지만 이미지를 재구성하기 위해서는 $2N$ 개의 ($F(k_m)$ 의 위상과 크기) 정보가 필요하다. 이런 모자란 정보를 보충하는 방법으로 역격자 공간에서 보다 더 높은 해상도로 촘촘하게 회절패턴을 측정하는 것을 생각할 수 있다. 예를 들어 각 $k_m = \frac{2\pi}{2L}m$ 에서 회절패턴을 측정하면 $2N$ 개의 정보를 알게 되고 따라서 잃어버린 위상에 대한 정보를 보완할 수 있다. 이러한 측정으로 얻은 $2N$ 개의 식으로 전자밀도 계산에 필요한 N 개의 위상과, N 개의 amplitude에 대한 정보를 계산해 낼 수 있는 것이다. 이렇게 주어진 시편에서 요구되는 빈도보다 촘촘하게 회절패턴을 측정하는 것을 oversampling이라고 한다.^[1] Oversampling 개념을 실공간에서 생각하면 $2L$ 의 공간을 측정할 수 있는 Nyquist frequency로 측정하는데 있어, 시편

Fig. 3. Three dimensional RNA-i micro spongy structure. The scale bar is 500 nm and b-e represent sectioned-images in the x-y plane.(from Ref. [2])

의 크기가 L 이고 나머지 영역에서는 전자밀도가 0인 제약을 가진 것이라고 볼 수 있다. 이러한 정보를 support constraint라고 하는데, 가장 간단한 support constraint가 위에서 기술한 zero-density constraint이다. 이것은 주어진 영역 밖에는 전자밀도가 0이라는 것을 아는 것이다.

Oversampling을 이용하여 이미지를 재구성하는 것이 개념적으로는 간단하지만 실질적으로는 $2N$ 개의 연립방정식을 풀어야 하므로 분석적으로 이미지를 재구성하는 것은 거의 불가능하다. 따라서 현재에는 iterative하게 참 이미지에 접근해가는 컴퓨터 알고리즘을 사용하는 방법이 많이 사용되고 있다. Iterative 알고리즘의 목적은 oversampling 조건을 만족하게 촘촘히 측정된 회절패턴을 만족하고 또 실공간에서 support constraint를 만족하는 전자밀도를 찾아내는 것이다.

XFEL을 활용한 coherent X-선 이미징은 이제 막 시작단계에 있다고 할 수 있으나 기존의 제 3세대 방사광가속기의 X-선 빔을 활용한 coherent X-선 회절 이미징 실험은 많이 보고되고 있다. 방사광 X-선은 incoherent하므로 이 경우에는 X-선 빔을 coherent volume 내로 국한시키는 추가적인 노력이 필요하지만, 전 세계적으로 다수의 방사광가속기가 가동되고 있고, 또 그 성능이 개선되고 있어 방사광가속기 기반 coherent X-선 산란 연구는 꾸준히 증가하고 있다고 할 수 있다.

XFEL 기반 coherent X-선 회절 이미징의 또 하나의 중요한 점은 XFEL이 극초단 펄스라는 점이다. 단백질 등 X-선 산란강도가 작은 물체에서 회절패턴을 얻기 위해서는 매우 휘도가 큰 X-선을 조사해야 하는데 이러한 X-선은 시편을 파괴하게 된다. 이를 극복하는 방법으로 펄스성질을 활용하는 것이다. 펄

REFERENCES

- [2] M. G.-Jones, Y. Bessho, S. Kim, J. Park, S. Kim, D. Nam, C. Kim, Y. Kim, D. Y. Noh, O. Miyashita, F. Tama, Y. Joti, T. Kameshima, T. Hatsui, K. Tono, Y. Kohmura, M. Yabashi, S. S. Hasnain, T. Ishikawa and C. Song, Nature Communications 5, 3798 (2014).

스펙이 시편이 파괴되는 시간보다 작으면 회절은 파괴가 일어나기 전에 모두 일어나고 그 후 시편이 파괴되므로 파괴되기 전 구조를 알아내는 방법이다. 이와 같이 XFEL을 활용한 X-선 이미징 기술은 결국 시간분해 이미징 기술로 발전할 것이고 극초단에서 극미세 구조를 연구하는 중요한 기술이 될 것으로 기대된다.

초고속 X-선 펌프-프로브 시간분해 X-선 회절

XFEL의 최대 강점인 10 펨토초 영역에 이르는 극초단의 펄스 광원이라는 점은 수십 펨토초 내에 일어나는 현상을 연구할 가능성을 제기하고 있다. 응집물질 내에서 전자, 스핀의 거동이 10 펨토초 영역이고 격자의 거동이 수백 펨토초 시간대에서 일어나는 것을 감안하면 XFEL X-선 펄스는 응집물질의 전자-스핀-격자의 거동을 연구하는 열쇠를 쥐어주는 것이다. X-선 펌프-프로브 시간분해 X-선회절의 가장 보편적인 방법은 극초단 레이저 펌프 빔으로 시편을 여기시키고 일정한 시간이 지난 후에 X-선 프로브 펄스를 시편에 조사하여 그 회절패턴을 측정하는 것이다. 여기서 펌프빔과 프로브빔의 시간적 동기화 기술이 매우 중요하다. 회절패턴은 단일 X-선 펄스 빔을 활용하므로 주로 CCD 등 이차원적 검출기로 측정한다.

XFEL 펄스를 활용한 펌프-프로브 연구는 기존의 방사광가속기 기반 시간분해 연구와 두 가지 측면에서 커다란 차이가 있다. 첫 번째는 시간분해능이다. 기존의 방사광가속기의 X-선 펄스의 펄스폭은 수십~수백 피코초 정도이므로 시간분해능을 피코초 이하로 높이기에는 한계점이 많이 있다. 반면 XFEL 펄스는 그보다 훨씬 짧은 10 펨토초 영역이므로 이론적으로 시간 분해능을 100 펨토초 이하로 가져갈 수 있다. 따라서 원자의 개별적인 거동을 연구하는데 매우 적합하다고 할 수 있다. 두 번째 차이점은 데이터 획득 방법이다. 기존 방사광가속기는 주어진 펌프 빔과 프로브 빔 간격에서 반복적으로 측정을 하여 신뢰성이 높은 데이터를 얻는다. 이 방법은 시편이 X-선 측정 후 일정한 시간이 지나면 원상태로 회복한다는 가정 하에 진행된다. 방사광 X-선은 휘도가 시편을 변화시킬 정도로 높지는 않으므로 대부분의 경우 이러한 반복 측정이 가능하다. 반면 XFEL은 펄스의 휘도가 매우 높아 회절 신호 측정 후 시편이 훼손되는 경우가 많다. XFEL 펌프-프로브 실험은 동일한 시편을 다수 준비하고 각각의 펄스로 각 시편을 측정한 후 데이터 분석하는 방법을 취하고 있다.

XFEL X-선에 회절된 패턴은 전술한 바와 같이 X-선의 coherency에 의해 물질의 전자밀도의 순간적이고 직접적인 푸리에 변환인 스펙클(speckle) 양상의 패턴을 보인다. 시편이 다이내믹하게 시간에 따라 변화할 때에는 이러한 스펙클 변화의 관찰로 구조의 dynamics를 관찰할 수 있게 된다. 주어진 시간 t 의 회절강

Fig. 4. Observation of chemical bond formation in solution utilizing XFEL pump-probe technique.^[3]

도와 $t + \Delta t$ 에서의 회절강도 간의 상관관계를 분석하여 시편의 다이내믹스를 연구하는 것인데 이러한 방법을 X-선 광 상관 분광법(X-ray Photon Correlation Spectroscopy, XPCS)라고 한다. XPCS 방법은 가시광선 영역의 레이저를 이용한 dynamic light scattering의 원리를 이용한 유사한 측정 방법이지만 X-선 영역에서 적용함으로써 나노스케일의 구조에 관한 동역학의 측정이 가능하다. 현재 XPCS는 나노미터 스케일을 연구하기 충분한 원자 간격 수준의 공간분해능을 보유하고 있으나, 시간적으로는 현재 수 초 단위의 분해능에 머물러 있다. XPCS 역시 XFEL을 활용하면 그 시간 분해능을 펨토초 영역으로 획기적으로 개선할 수 있다. XFEL을 활용하여 XPCS 측정을 하고자 할 때는 X-선 펄스를 조절 가능한 일정한 시간 간격을 가진 두 개의 펄스로 나누는 것과 X-선 자체에 의한 시편의 훼손 등을 방지하는 것 두 가지 기술적인 어려움을 극복해야 한다.

나오는 글

XFEL 광원은 원자 스케일의 거동을 엿볼 수 있는 절호의 기회를 제공한다. XFEL은 단파장 영역에서 레이저를 제공함으로써 과학의 혁신을 가져올 것이다. 이러한 과학의 혁신은 현재 기술을 지배하고 있는 나노스케일 그리고 나노초 정도의 빠르기를 가진 소자들이 원자스케일 그리고 펨토초 빠르기로 발전하는 기술적 진보를 가져올 것이다. XFEL이 기여할 수 있는 또 하나의 중요한 분야는 생명과학이다. 많은 단백질의 원자 구조가 XFEL에 의해 규명될 것이고 생명현상의 이해와 신약개발에 기여할 것이다. 본 글은 XFEL의 가장 기초적 성능인 coherency와 pulse 성질에 기반한 회절 기술을 개괄적으로 논의하였다. 하지만 XFEL을 이용하면 아주 많은 새로운 기술이 가능할 것으로 기대된다.

REFERENCES

- [3] K. H. Kim, J. G. Kim, S. Nozawa, T. Sato, K. Y. Oang, T. Wu Kim, H. Ki, J. Jo, S. Park, C. Song, T. Sato, K. Ogawa, T. Togashi, K. Tono, M. Yabashi, T. Ishikawa, J. Kim, R. R., J. Kim, H. Ihee and S. Adachi, Nature **19**, 385 (2015).