펨토초 엑스선 레이저와 초고속 이미징

DOI: 10.3938/PhiT.26.025

송창용

Femtosecond X-ray Laser and Ultrafast Imaging

Changyong SONG

The advent of X-ray free electron lasers (XFELs) heralds the new era in ultrafast science with unprecedentedly precise view to physical phenomena far from equilibrium. Ultrashort pulse width (~ 10 fs), intense pulse power (> 10 GW) and high degree of spatial coherence best characterize the XFEL, which realizes dynamic single-pulse imaging of irreversible phenomena at better than 10 nm spatial and several ps temporal resolution. This expects to deepen our understanding on inhomogeneous phase transition process in functional oxides compounds, quantum control of hidden phases, basic phase change processes of solid melting, etc. A paradigm shift in structure based science is imminent.

들어가며

엑스선이 처음 소개된 이후 한 세기의 시간이 훌쩍 지났다. 엑스선의 성질에 관한 더욱 정교해진 이해와 더불어 폭넓은 활용이 계속 선보여졌다. 남편 뢰트겐의 실험실에서 나오며 “죽음을 보았다”라며 첫 인상을 말했던 안나 베르타(Anna Bertha Ludwig, 1839-1919) 여사의 표현은 21세기를 사는 우리에게 마치 오래된 구전동화 속 이야기를 듣고 있는 듯 막연한 거리감을 느끼게 한다. 이미 우리의 일상에서 친숙해져 버린 ‘알 수 없는 광선’의 현재상이다. 그렇게 우리에게 친숙하

저자약력

송창용 박사는 전북대학교 물리학과 학부를 졸업하고, 2001년 미국 아이오와 주립대학에서 응집물리 실험으로 박사학위를 받았다. 포스텍, UCLA 물리학과에서 박사 후 연구, 일본의 RIKEN에서 유닛리더(2008-2013), 팀 리더(2013-2015)로 엑스선 자유전자 레이저를 이용한 이미징 연구 프로젝트를 진행하였다. 2015년부터 포스텍 물리학과에 부교수로 재직 중이다. (cysong@postech.ac.kr)

게 자리 잡은 엑스선은 기초과학 연구의 최전선을 선도해 왔다. 물질의 공간 및 에너지 구조를 정확하게 이해하려는 관심은 더욱 성능이 향상된 엑스선 광원을 계속적으로 요구해 왔으며 방사광 가속기의 발전을 이끈 원동력으로 작용했다.

엑스선 자유전자 레이저(X-ray free electron laser, XFEL)는 엑스선의 발생 방법과 발생된 빛의 특성에 있어 기존의 방사광과는 비교할 수 없는 획기적인 변화를 보였다. 가시적인 발전을 가져왔다는 것을 인정하는 의미에서, 차세대 즉 4세대 방사광 가속기라는 명칭으로 불리고 있지만 기존의 방사광 가속기와는 확연히 구별되는 새로운 개념의 광원으로 이해하는 것이 오히려 적합하다. 참고로 3세대 방사광 가속기는 전자의 방향을 바꾸는 작은 자석들이 수 미터에서 길게는 십여 미터에 달하는 길이에 걸쳐 주기적으로 배치되어 있는 언듈레이터(undulator)라는 장치를 이용해 더 밝고, 편광성이 높은 엑스선을 얻는 방식이다.

엑스선 자유전자 레이저(이하 XFEL)는 다음의 세 가지 특성을 가진 엑스선을 발생한다. 펨토초의 초단파(femtosecond short pulse width), 3세대 광원에 비해 펄스당 일억 배 이상 더 밝은 고휘도(high peak brilliance), 레이저라는 이름에서 연상할 수 있는 결맞음성(spatial coherence)이 그것이다. 기존의 방사광 가속기를 통해 발생된 엑스선이 가지지 못했던 차별되는 특성이다(그림 1). XFEL의 이러한 새로운 세 가지 특성을 적절하게 활용한 새로운 차원의 연구가 세계 각국의 연구자를 통해 지난 수년간 선보여지고 있다. 국내에도 지난해 6월 레이징에 성공하여 올 2017년 6월 7일부터 이용자 실험을 지원 중인 PAL-XFEL 시설이 있다. 미국, 일본에 이어 세 번째로 XFEL을 가동하는 국가에 해당된다. 사실상 XFEL이 처음 선보인 지 이미 10년 가까운 시간이 지난 지금에 전혀 새로운 연구를 선보이는 것이 물론 쉽지만은 않다. 하지만 첨단 연구의 새로운 패러다임을 창출하는 데 앞장설 수 있는 좋은 기회를 가지고 있는 것은 부인할 수 없다. 이를 기반으로 독창적인 연구 브랜드를 창출하려는 노력이 가속화되기를 기대하며 XFEL을 이용한 초고속 이미징이라는 새로운 연구분야에 관한 국제적인 동향과 PAL-XFEL의 준비 상황을 소개한다.

Fig. 1. Unique properties of X-ray Free Electron Laser radiation in relation to essential physical phenomena.

XFEL 단일입자 이미징

XFEL의 강한 펄스 에너지, 짧은 펄스 폭, 높은 공간 결맞음 성질을 모두 활용하는 연구 중 하나가 바로 단일 시료 이미징 (single particle imaging) 연구이다. 주로 사용하는 실험기법에는 결맞는 엑스선 회절 이미징(coherent diffraction imaging, CDI) 방법이 있다(그림 2).^[1] 진행하는 파(wave)가 물체를 만나면 회절을 일으켜 물체의 모양에 의해 발생하는 경로 차이로 인해 다양한 간섭무늬가 나타나는 '회절패턴'을 만든다. 물체에서 다소 떨어진 위치에서 이러한 회절패턴을 측정하면, 즉 프라운호퍼 조건을 만족하면, 측정된 회절패턴은 시료를 푸리에 공간변환 시킨 형태를 가진다. 엑스선과 같은 짧은 파장을 가진 전자기파를 사용하는 경우 시료를 구성하고 있는 전자들에 의해 회절이 발생하게 되고, 거꾸로 회절패턴으로부터 전자의 분포를 유추하게 된다. 조금 더 자세하게 기술하자면, 검출기에 측정된 회절패턴은 세기 성분만을 가지게 되며 어느 위치에서 각각의 파가 진행이 되었는지를 알 수 있는 위상정보는 숨겨지게 된다. 즉 측정된 회절패턴으로부터 곧바로 역 푸리에 변환을 시행한다고 해서 시료의 이미지를 얻을 수는 없다. '결맞는 엑스선 회절 이미징'의 경우 Nyquist-Shannon Sampling 이론을 활용, Nyquist frequency보다 더 촘촘하게 회절패턴을 측정(oversampling 기법)해서 감추어졌던 위상정보를 수치적인 방법으로 복원하게 된다. 이렇게 복원된 위상정보와 측정된 세기정보를 이용해서 시료의 이미지(엑스선의 경우 시료의 전자 밀도 분포)를 얻게 된다. 특히 이러한 이미징 기법은 결정과 같은 규칙적인 공간 배열을 가지는 시료를 필요치 않는다. 단일 입자한 빛의 위상이 이러한 비규칙적인 구조를 가진 시료 전체에 대해 정의되어야 하므로 빛의 충분한 공간 결맞음성이

Fig. 2. Schematics of coherent diffraction imaging (CDI) experiments. (from J. Miao, *et al.*, Phys. Rev. Lett. 97, 215503 (2006))

매우 중요하다. XFEL은 높은 공간 결맞음 특성을 가진 엑스선을 발생시켜 결맞는 회절 이미징 실험에 매우 적합하다. 결정화된 시료를 필요치 않는 특성으로 금속 나노입자에서부터 세포(cells), 구조체(organelles), 바이러스 등 바이오 시스템에 이르는 다양한 시료의 나노스케일 고해상도 이미지를 얻는데 두루 활용되어 왔다. 막단백질처럼 결정으로 만들기 어려운 시료의 경우 구조 분석을 하는데 어려움이 존재해 왔는데, 이러한 문제에 새로운 돌파구를 제공할 수 있을 기대에서도 XFEL의 중요성이 강조된 바 있다.

단일 시료를 사용한 XFEL 3차원 구조분석은 저온 전자현미경(cryo electron microscopy, cryoEM)의 단일입자 이미징 실험과 유사한 방법이다. XFEL 단일 펄스를 이용해 2차원 회절패턴을 측정 이로부터 시료의 이미지를 얻게 된다. 이러한 과정을 동일한 구조를 가진 시료에 대해 반복적으로 적용해서 3차원의 이미지를 얻어내는 방법이다. 시료는 무작위의 방향으로 엑스선에 노출되게 되고, 충분히 많은 수(수만 이상)의 2차원 패턴을 측정할 경우 확률적으로 3차원의 모든 방향을 보여주는 ensemble을 얻을 수 있어 3차원 구조를 규명할 수 있게 된다. 이러한 연구의 개연성은 일본의 SACLA XFEL 시설을 이용 금속 나노촉매 입자의 3차원 구조를 밝히는 연구를 통해 입증된 바 있다.^[2] 생체시료의 단일 입자 3차원 이미징 연구는 국제 컨소시엄을 통해 추진 중인데, 미국의 XFEL 시설인

REFERENCES

- [1] J. Miao, R. Sandberg and C. Song, IEEE J. Sel. Topics in Quant. Electr. 18, 399 (2011).
- [2] X. Rui, *et al.*, Nat. Commun. 5, 4061 (2014).

Fig. 3. Schematics of single-pulse imaging experiments. (a) Serial sample loading via thin solid membranes. (b) Gasjet injection of single specimens. (from R. Xu, *et al.* 5, 4061, Nat. Commun. 2014 & M. M. Siebert, *et al.*, 470, 78, Nature 2011)

LCLS(Linac Coherent Laser Source)에서 실험이 진행되어 왔다. 최근 바이러스 입자의 3차원 구조를 얻어내는 데 성과를 얻었다.^[3]

수 마이크로미터 크기로 집속된 단일 XFEL 펄스는 10 GW 이상의 파워를 시료에 전달하게 되는데 이렇게 강한 파워로 인해 펄스 입사 후 시료는 결국 증발되어 버린다. 매우 짧은 펄스폭(10 펨토초 수준)을 가진 엑스선을 사용할 경우 시료가 파괴되는데 소요되는 시간(시료의 손상은 sound velocity로 전파)에 앞서 회절패턴을 얻을 수 있다. 즉 XFEL이 제공하는 초 단파를 이용하면 엑스선 흡수에 의한 시료의 구조변형이 일어나기 이전인 원형상태의 시료구조를 얻게 된다.^[4] 반면 이러한 실험을 수행하기 위해선 매번 새로운 시료를 엑스선 펄스에 제공해 주어야 한다. 단일입자 인젝터 시스템을 필요로 하는데, 각기 다른 실험 환경에 적합한 다양한 시료 인젝션 방법이 개발되고 있다(그림 3). 국내의 엑스선 자유전자 레이저 시설인 PAL-XFEL 역시 단일 입자 이미징 연구를 수행할 수 있는 기초적인 실험기반이 준비되어 있다. 지난 2017년 3월 첫 번째 PAL-XFEL 단일펄스 이미징 실험이 성공적으로 수행되었다(그림 4). 국내의 단일펄스 이미징 연구기반을 이용한 실험이 진행될 수 있음을 시사한다. 현재는 얇은 박막 위에 많은 시료를 장착시키고 각각의 단일 펄스가 새로운 시료에 입사될 수 있도록 박막을 빠르게 이동시키는 ‘fixed target system’이 사용 가능하다. 시료의 특성에 맞는 보다 다양한 실험 환경을 마련하기 위해 집속된 공기의 흐름을 이용해 시료를 전달할 수 있는 ‘aerosol injector’ 또한 현재 개발 중이다. 수 나노미터 이상의 높은 분해능을 가진 이미지를 얻기 위한 최적의 실험 환경을 만들기 위한 노력이 활발하게 진행되고 있다.

펨토초 단일펄스 초고속 이미징

XFEL 단일 입자 이미징 연구는 cryoEM 연구와 유사한 특

Fig. 4. Single-pulse diffraction pattern from PAL-XFEL (left), image obtained from the diffraction pattern (center), SEM image of a similar specimen (right).

성을 가지는 것으로 생각될 수 있다. 하지만 적용 가능한 시료의 크기, 시료의 환경 등을 고려하면 엑스선 이미징의 경우 폭넓은 적용범위를 가진다. XFEL 단일입자 이미징 연구가 가지는 중요한 차별성 중 하나로 초고속 시분해 이미징을 생각할 수 있다. XFEL에서 발생된 엑스선이 수십 펨토초의 펄스폭을 가지는 특성을 활용, 여기에 펨토초 광학 레이저 등을 활용 수백 펨토초의 시분해능을 가진 초고속 이미징을 기대할 수 있다. 엑스선이 가지는 짧은 파장으로 인해 수 나노미터의 공간 분해능과 수백 펨토초의 시간 분해능을 동시에 갖춘, 사실상 최고의 시공간 분해능을 동시에 갖춘, 이미징 연구를 수행할 수 있는 기반을 제공하는 것이다.

단일펄스를 이용한 초고속 이미징 실험은 물질의 비평형(비가역) 상태를 실제 이미지를 통해 이해할 수 있게 한다. 기존에는 대부분 평형상태, 혹은 평형상태에 가까운 비평형 상태,에 관한 연구가 주를 이루었던 상황을 고려하면 비평형상태의 물리현상을 이미지를 통해 연구하는 것은 매우 중요한 의미를 가진다. 비평형 상태에서 전혀 새로운 물리현상이 나타나는 사

REFERENCES

- [3] A. Munke, *et al.*, Scientific Data 3, 160064 (2016).
- [4] R. Neutze, R. Wouts, D. van der Spoel, E. Weckert and J. Hadju, Nature 406, 752 (2000).

레가 최근 많이 보고되고 있다. 강한 펄스초 IR 레이저를 시료에 입사할 때 나타나는 고온의 유사 초전도 현상(K_3C_{60}), 새로운 초격자구조의 생성과 전기특성(metal-insulator transition) 상전이($1T-TaS_2$), 초고속 metal-insulator 상전이(VO_2), 펄스초 초고속 자성상태 변화($P_{0.7}C_{0.3}MO_3$) 등은 평형상태의 상변화에서는 보고되지 않았던 현상들이다. 이러한 새로운 현상을 해석하는데 수반되는 어려움은 기존의 지식에 근거한 모델을 적용할 수 없는 것이다. 비평형 상태의 정립된 지식이 부족한 상황에서 가설을 세울 만한 정립된 이론이 없는 상황에서 새로운 현상을 해석하려는 시도는 명백한 한계를 가지게 된다. 모델과 가설을 필요하지 않는 직접적인 관측이 중요하게 되고, 이미징 연구의 중요성이 더욱 강조된다.

펄스초 광학 레이저를 이용해 시료를 변화시키고 XFEL 단일 펄스를 이용해 변화과정을 관측하는 초고속 이미징 연구는 국내연구진의 주도하에 진행되고 있다. 금속물질의 비가역 상변화 과정을 수 피코초 및 수 나노미터 분해능으로 직접 관측하는 성과를 얻었다. 국내의 PAL-XFEL을 기반으로 초고속 단일 펄스 이미징 연구를 지속적으로 추진하기 위한 준비가 한창 진행 중이다. 수백 나노미터 크기의 시료, 수 마이크로 크기로 집속된 XFEL 광원, 50 마이크로 크기로 집속된 펄스초 펌프 레이저가 한곳에서 공간적, 시간적으로 정렬되어야 하는 실험이다. 펄스초 IR 광원을 이용 10^{14} W/cm^2 이상의 펄스에너지로 시료에 전달하게 되는데, 시료의 thermal/non-thermal melting, micro-explosion, shock wave 발생을 통한 물질의 transient phase(warm dense matter 등) 형성 등 다양한 상변화를 유도할 수 있다. 극한 환경이나 또는 가상의 현실에서 존재할 수 있던 상황이 작은 실험실의 공간에서 연출될 수 있게 되는 것이다. XFEL을 이용 이러한 환경을 만들기도 하고, 또한 XFEL 단일펄스 이미징과 같은 실험을 통해 이렇게 유도된 물질의 상변화 과정을 직접 관측하는 것도 가능해지고 있다. 새로운 연구 패러다임을 창출하는 이러한 연구는 정교한 실험뿐 아니라 관측된 새로운 현상을 해석하기 위한 이론적인 노력이 많이 요구되는 상황이다.

단백질 구조 해석 및 분자 동영상

수십에서 수 마이크로 정도의 작은 크기를 가진 단백질 결정을 이용한 구조분석 연구는 국제적으로 뜨거운 관심 속에

진행되고 있으며 가시적인 연구 성과를 보이고 있다.^[5] 현존 XFEL 시설이 가지는 펄스에너지가 아직은 단일 단백질 분자를 이용한 원자스케일 구조규명을 실현할 수 있을 만큼 충분치는 못한 형편이다. 엑스선 검출기 역시 더 높은 peak dynamic range를 감지할 수 있도록 성능 개선이 필요하다. 기존의 단백질 구조분석 연구에서처럼 결정화된 단백질 시료를 필요로 하는 측면에서는 커다란 차별성이 없는 것처럼 인식될 수도 있다. 하지만, 단일 펄스를 이용 작은 단백질 결정으로부터 엑스선 에너지에 의한 구조변형이 거의 없는 단백질의 구조를 얻어낼 수 있는 특성은 많은 새로운 가능성을 시사한다. 단일입자 이미징 연구에서와 같이 마이크로 사이즈의 단백질 결정 시료는 엑스선이 입사된 후 파괴된다. 실험은 XFEL 펄스에 마이크로 크기의 단백질 결정을 매번 새롭게 제공해주는 방식으로 진행된다. 시료를 100 K 이하의 저온상태에서 보존 엑스선 구조 해석 실험을 수행했던 방법과 구별되게 시료를 상온(단백질이 체내에서 존재하는 온도)에서 입사하고 상온의 구조를 이해할 수 있게 되었다. 또한 이러한 native 상태의 단백질이 실제 체내에서 외부 시그널을 감지해서 어떠한 구조변형을 통해 특정 생체기능을 유도하는지 그 변형과정을 실시간으로 추적해가면서 관측할 수 있다. 분자 동영상(molecular movie)을 만들려는 노력이다. 빛을 감지하는 시각의 기능에 중요하게 관여하는 막단백질(bacteriorhodopsin, bR)의 광 여기에 따른 구조 변형과정을 XFEL 펌프-프로브 실험을 통해 직접 관측하는 성과를 이룩하는데 이르렀다.^[6] 효소나 다른 자극을 통한 단백질의 구조변형과정을 이해하려는 연구 활동이 전 세계적으로 한창 진행 중이다.

맺음말

XFEL을 통해서 발생하는 새로운 엑스선 레이저 펄스는 다양한 분야에 걸쳐 연구의 새로운 지평을 개척하고 있다. 이제 일반 이용자를 위한 운전을 시작하는 PAL-XFEL의 독창적인 연구 분야 개척을 위한 전략 수립, 지속적인 연구개발, 그리고 활발한 연구 활동이 기대된다.

REFERENCES

- [5] H. Chapman, *et al.*, Nature **470**, 73 (2011).
- [6] E. Nango, *et al.*, Science **354**, 1552 (2016).