

X선의 초고속 결정구조 측정법

구영덕 · 김영철 · 오창섭[†]

한국과학기술정보연구원

(2014년 4월 23일 접수, 2014년 8월 29일 수정, 2014년 9월 1일 채택)

Survey on ultrafast time resolved X-ray diffraction measurements of crystal structure

Y.D.Koo, Y.C.Kim, C.S.Oh[†]

Korea Institute of Science and Technology Information

(Received 23 April 2014, Revised 29 August 2014, Accepted 1 September 2014)

요약

무기단결정을 광 펄스로 여기 한 격자에서 광학이나 음향포논을 이용하여 광 여기 반도체가 서브 피코초로 관측하고 있다. 다수의 회절 점으로 결정구조를 파악하는 것으로써 광 여기에 의한 분자결정 구조변화를 관측하는 것이 보고되고 있고 또한 반응이 진행되고 있는 중에 분자구조를 하나하나 영상으로 관측하는 것이 연구되고 있다. 단백질 분자구조의 시간에 따른 변화와 용액 중 분자의 광반응에 따른 구조변화를 파악하고 있는데 이것은 시스템에 따라 펨토 초에서 초 단위까지 다양하고 광범위하게 고도의 시간분해능으로 계측할 수 있는 X선 측정기술이다.

주요어 : X선광원, 시간분해능, X선회절, 싱크로트론 방사광, 결정구조

Abstract - We have surveyed on significant progress in recent developments of accelerator-based pulsed X-ray sources has offered the opportunity for time-resolved studies on fast structure dynamics on the nanometer scale. The required and currently available techniques for time resolved X-ray diffraction measurements using the third-generation synchrotron radiation sources are summarized. Ultrafast X-ray experimental techniques are discussed for femtosecond studies at future synchrotron radiation sources.

Key words : X-ray sources, time-resolved, X-ray diffraction, synchrotron radiation, crystal structure.

1. 서 론

최근 시간분해 X선 회절에 의한 분자구조 변화와 결정격자의 동역학(dynamics)을 원자크기에서 조사하는 것이 활발히 진행되고 있다. 무기단결정을 광 펄스로 여기 한 격자에서 광학이나 음향포논을 관측하고 광 여기 반도체가 서브 피코초에서 용해되는 것을 관측하고 있다. 다수의 회절 점으로 결정구조를

파악하는 것으로써 광 여기에 의한 분자결정 구조변화의 관측이 보고되고 또한 반응이 진행되고 있는 중에 분자구조를 하나하나 영상으로 관측하는 것도 시도되고 있다. 단백질 분자구조의 시간에 따른 변화와 용액 중 분자의 광반응에 따른 구조변화도 파악되고 있는데 이것은 시스템에 따라 펨토 초에서 초 단위까지 다양하고 광범위하며 고도의 시간분해능으로 계측할 수 있는 X선 측정기술이 이들 구조변화를 파악하는 관건이 될 수 있다.

펄스 X선 광원은 수십 피코초로부터 수백 피코초의 펄스폭을 갖는 방사광(SR), 수백 사이클의 펄스를

[†]To whom corresponding should be addressed.

KISTI, ReSEAT Program, Daejeon 305-806, KOREA

Tel : 042-869-0767 E-mail : chspoh@daum.net

발생하는 역 콤프턴(compton effect) 산란과 수 피코초의 레이저 플라즈마 X선 광원 및 X선 다이오드 등이 있다. 방사광의 펄스폭은 다른 광원에 비해 10~100배 넓지만 지향성, 파장 가변성과 안정성이 대단히 우수하다. 최근에는 더 짧은 방사광을 발생시키려는 실험이 진행되고 있다. ALS(Advanced Light Source, 미국)는 펄스 레이저를 이용하여 방사광 축적 링에서 전자 번치(bunch)를 얇게(slice)하는 방법으로 수백 펨토초의 X선 펄스를 발생시키는데 성공하였고 또한 실험용 선형가속기 일부를 개조한 SPPS(Sub-Pico-second Pulse Source)로 서브 피코초 X선을 구하는데 성공하였다.

SPring-8에서는 Crab Cavity를 이용하는 방법이나 또는 CHESS ERL(Energy Recovery Linac)으로 단 펄스 X선을 구하는 계획이 진행되고 있고 차세대 방사광원으로 X선 자유전자레이저 건설이 유럽, 미국, 일본 등에서 진행되고 있으며 이것이 실현되면 시간폭이 펨토초인 고강도 X선 펄스를 얻을 수 있게 될 것이다. 초단(극초) 펄스 X선을 발생하여도 외부 레이저와 시간동기 격차가 이 펄스폭보다 크면 초단 펄스를 활용할 수 없다. 이에 대한 해결방법은 더욱 정밀하게 방사광 시간을 펄스레이저 광에 동기시키는 방법과 방사광펄스와 레이저 펄스광의 출력시간차를 정확히 측정해서 정확한 시간동기로 높은 시간분해 정보를 얻는 방법이다.

2. 방사광 광원의 시간특성

SPring-8에서 얻어지는 방사광펄스폭은 40피코초(FWHM) 정도이고 이것은 축적링 중 전자 번치 길이로 결정된다. 축적링에 설치된 RF공동(cavity) 가속 전압의 주파수 508.58MHz가 방사광 펄스의 시간 폭을 결정한다. 방사광 시설의 RF 기준신호에 맞추려면 레이저와 RF 기준신호의 동기 정밀도뿐만 아니라 RF 공동과 전자 번치 사이의 시간도 중요하다. 축적링에서 전자는 방사광 발생 때문에 일어나는 에너지 손실을 보충하여 안정되게 돌아가도록 피드백이 걸린다. SPring-8 전자 번치의 RF 가속전압에 대한 위상은 전자 번치가 안정되고 레이저펄스를 특정 번치로부터 방사광 펄스만을 선택해서 조명하기 때문에 전압 강하가 일어나는 것을 피할 수 있다[그림 1]. SPring-8의 축적링의 단펄스 발생방법으로 초전도 Crab cavity를 이용하는 방법이 검토되고 있다.

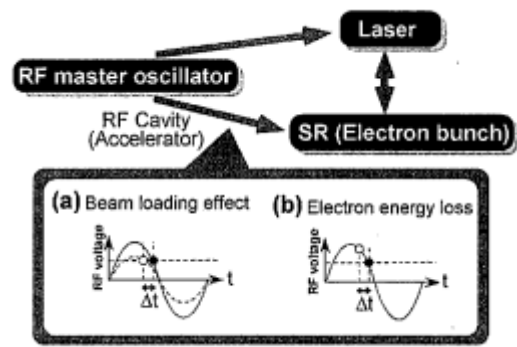


Fig. 1. Laser-SR synchronization scheme and time drift of electron bunches by the beam loading effect

X선 영역에서의 자유전자를 제조하기 위한 방법으로서 SASE(Self-Amplified Spontaneous Emission) 방식의 개발이 진행되고 있다. 이것은 선형 가속기에 의한 싱글 패스 방사광 증폭기로 공진기가 없다. SCSS(SASE)는 SASE(SCSS)와 비교해서 전자층이 낮고 가속관의 가속구배가 큰 소형으로 SPring-8에 놓인 총길이 1km 이내로 하여 낮은 비용과 높은 안정성을 지향한 X선 광원이다. 반면에 축적링형 광원에 비해 전자가 안정적으로 가속되지 않고 피드백 구성이 없으며 광 발생과정에서도 유도 증폭이 일어나기 때문에 시간특성을 비롯해 안정화가 가장 중요한 문제라고 생각된다.

3. 방사광을 이용한 시분해 측정법

축적링에서 시간분해 측정의 경우 방사광의 반복 주파수가 높기 때문에 수 나노초 보다 늦은 시간 측정으로는 유사 CW 광원으로 간주할 수 있고 검출기의 시간분해능을 활용한 측정이 가능하다[그림 2]. 방사광 펄스를 CW로 한 고속시간영역(<40피코초)에서는 X선 스트리크 카메라로 시간변화를 조율할 수 있다. X선 스트리크 카메라의 시간분해능은 광전 면의 2차전자 운동량 분포로 결정되며 1피코초가 된다. 한편 서브피코초 펄스 광원을 이용하면 더 높은 고속영역에 접근할 수는 있지만 펄스 사이에 억제시간이 아주 정밀하여야 한다.

제3세대 방사광 시설 SPring-8의 축적링에 있어서 방사광 펄스 및 유사 CW 광의 성질 양쪽 모두를 활용한 측정 예로 반도체 결정에서의 음향펄스 에코를

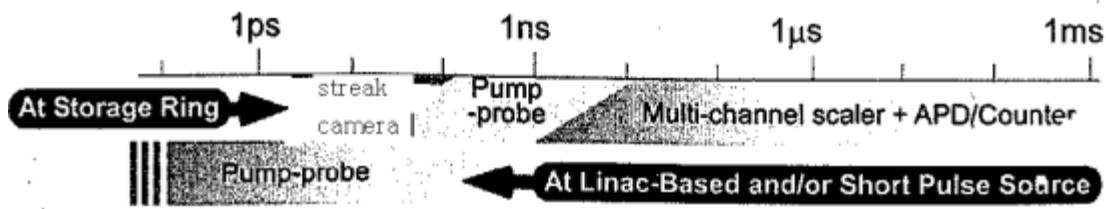


Fig. 2. Time resolution for an X-ray streak camera

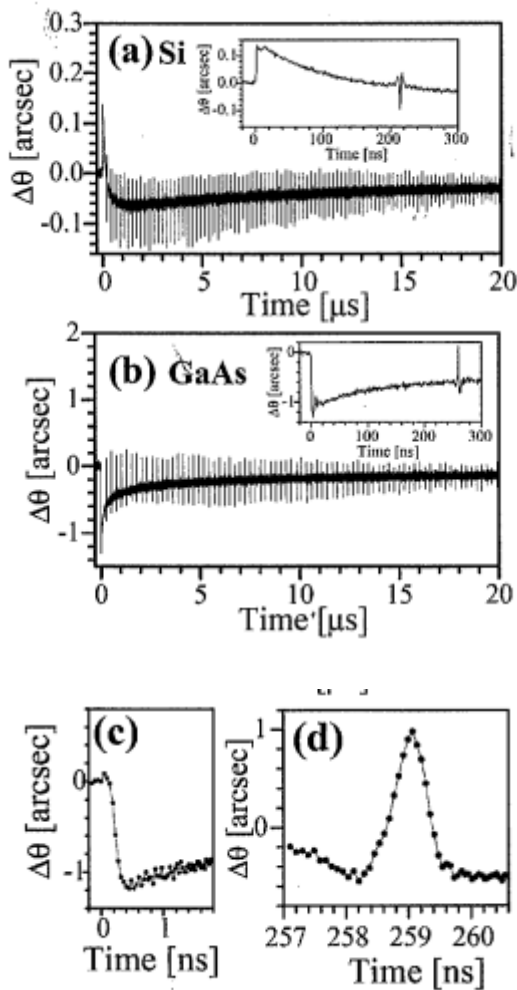


Fig. 3. Time resolution for an X-ray streak camera

파악하기 위한 실험이 있다. Si 반도체 단결정의 기관 표면에 시간 폭 130펨토초 펄스 레이저를 조명하면 여기서 Si 결정이 압축되고 음향펄스가 발생한다. 동시에 캐리어의 확산을 동반한 완화와 재결합으로 격자에너지 이동에 의해 팽창이 일어난다. 또한 GaAs 단결정 기관은 여기에 의해 팽창하고 그에 따라 발생

하는 음향 펄스의 뒤뜰림 부호가 Si에 있는 것과는 반대로 된다. GaAs 결정에서 나타난 에코펄스폭 1나노초 부근에서 첫 팽창과 첫 에코를 시간분해능 40피코초에서 파악하였다. 측정된 각 펄스에서 음향펄스는 결정 가운데를 전파하기 때문에 파속이 넓어지면 회절효과에 의해 펄스파형이 변하게 된다[그림 3].

4. 서브 피코초 시분해 X선 측정기술 개발

고 정밀도 동기 법: 동기의 정밀도를 높이는 방법으로 레이저에 의해 방사광의 출력시간을 제공하는 방법 및 방사광의 타이밍을 정확히 측정하여 거기에 맞추어 레이저를 동기 시키는 방법이 있다.

레이저를 주 클럭으로 하는 방법 : 선형 가속기 베이스의 방사광과 전자총 레이저 포토 캐소드가 이용되는 경우에는 펄스 레이저광을 이용하면 수 피코초 정도에서는 동기 하는데 문제가 없다. 또 레이저 콤프턴(compton effect)산란을 이용한 소형 펨토초 X선 발생장치에서는 강도가 높은 전자총용 레이저의 펄스 레이저를 전자와 충돌시켜 X선을 발생시키는데 그 일부 레이저를 여기 광으로 이용하여 펨토초로 정밀하게 동기 할 수 있다. ALS에서 행한 축적링의 번치슬라스(bunch slice)법은 펨토초 레이저광으로 전자 빔에너지를 변화시켜 이것을 편향전자석에 통과하여 레이저광과 상호작용 한 부분만 방향 변화시키는 방법이다. 향후 방사광 펄스폭보다 응답시간이 빠른 스위칭 방식을 개발하면 단 펄스 X선 생성이 가능하고 스위칭용 레이저 일부를 여기용으로 이용하여 높은 정밀도의 동기를 달성할 수 있을 것으로 생각된다.

고정밀도 방사광 타이밍 신호 시스템 : 고정밀도 방사광 타이밍 신호 시스템은 기존의 고안정성의 축적링 시간분해 방법이 검토되고 있으며 Crab cavity에 의한 초단펄스 X선에 대해선 타이밍피드백 시스템이 유효할 것으로 생각된다.

5. 결론

방사광은 물질을 투과하기 쉽고 파장이 대단히 짧기 때문에 직접 전자와 상호작용을 할 수 있는 포톤이다. 이러한 방사광의 특징 때문에 물질의 구조를 규명하는데 이용하기 적합한 광의 종류라 할 수 있다. 레이저와 방사광은 대단히 밀접한 관계가 있다. 시간적으로 더 짧은 펄스 방사광 광원이 출현하고 있으며 시간분해 측정기술도 레이저 분야의 연구방법을 참고할 필요가 있게 되었다. 본 자료는 시간영역에만 초점을 맞추었지만 향후에는 공간분해와 고감도 측정기술이 더욱 필요할 것으로 생각된다. 즉 기존의 결정법으로는 알 수 없던 물질을 X선 산란에 의해 그 구조를 파악할 수 있게 되며, 최근에는 차세대 광원개발로 미소결정이나 비결정의 산란법도 검토되고 있다.

사사

본 자료는 과학기술진흥기금 및 복권기금에 의해 지원된 KISTI ReSEAT 프로그램으로 수행되었습니다.

References

1. K. S.-Tinten, C. Blome, J. Blums, A. Cavalieri, C. Dietrich, A. Tarasevitch, L. Uschmann, E. Foerster, M. Kammler, M. Hoegen . and D. Linde: Nature 422 (2003) 287.
2. A. M. Lindenberg, L. Kang, S. L. Johnson, T. Missalla, P. A. Heimann, Z. Chang, J. Larsson, P. H. Bucksbaum, H. C. Kapteyn, H. A. Padmore, R. W. Lee, J. S. Wark, and R. W. Falcone: Phys. Rev. Lett. 84 (2000) 111.
3. K. S.-Tinten, C. Blome, C. Dietrich, A. Tarasevitch, M. Horn von Hoegen, D. von der Linde, A. Cavalieri, J. Squier, and M. Kammler: Phys. Rev. Lett. 87 (2001) 22570 I.
4. A. Rousse, C. Rischel, S. Fourmaux, I. Uschmann, S. Sebban, G. Grillon, Ph. Balcou, E. Foersrer, J. P. Geindre, P. AUdebert, J. C. Gauthier, and D. Hulin: Nature 410 (2001) 65.
5. D. C. Kim, S. Pillet, G. WU, w. K Fullagar, and P. Coppens: Acta Crystallogr. ASS (2002) 133.
6. F. Schotte, M. Lim, T. A. Jackson, A. V. Smirnov, I. Soman, J. S. Olson, G. N. Phillips Jr., M. Wulff, and P. A. Anfinrud: Science 300 (2003) 1944.
7. H. Ihee, M. Lorenc, T. K. Kim, Q. Y. Kong, M. Cammarata, J. H. Lee, S. Bratos, and M. Wulff: Science 309 (2005) 1223.
8. A. L. Cavalieri et al.: Phys. Rev. Lett. 94 (2005) 114801.
9. Y. Tanaka, T. Hara, H. Yamazaki, H. Kitamura, and T. Ishikawa: J. Synchrotron Rad. 9 (2002) 96.
10. I. Rossbach et al.: Phys. Rev. Lett., 85 (2000) 3825; V. Ayvazyan et al.: Eur. Phys. J. D 37 (2006) 297.
11. R. Service: Science 298 (2002) 1356.
12. Y. Hayashi, N. Tsukuda, E. Kuramoto, Y. Tanaka, and T. Ishikawa: J. Synchrotron Rad. 12 (2005) 685.
13. Y. Hayashi, Y. Tanaka, T. Kirimura, N. Tsukuda, E. Kuramoto, and T. Ishikawa: Phys. Rev. Lett. 96 (2006) 115505.
14. T. Miura, H. Nagaoka, K. Takasago, K. Kobayashi, A. Endo, K. Torizuka, M. Washio, and F. Kannari: Appl. Phys. B7S (2002) 19.
15. A. M. Lindenberg et al.: Science 308 (2005) 392.