

1. 회절과 이미징

우리가 눈으로 물체를 본다는 것은 물체상의 한 점에서 사방으로 퍼져나가는 빛의 일부분을 눈의 수정체가 망막의 한 점에 모아 하여 물체 표면의 모든 점을 망막상의 점으로 일대일 대응하여 표시하는 것을 의미한다. 이와 같은 이미징 방식은 대부분 광학현미경의 기본원리로서 물체에 의하여 회절(혹은 반사: 반사도 넓은 의미에서 회절로 구분할 수 있음)된 빛을 렌즈를 이용하여 한 점에 모아 하여 물체의 형상을 관측하는 것이라고 할 수 있다. 따라서 실험적으로 이미징과 회절의 차이는 이미징의 경우 그림 1의 (a)에 나타난 것처럼 회절된 빛을 렌즈로 이미징 면에 집속하여 그 집속된 빛의 강도를 측정하는 것이고, 회절실험은 그림 1의 (b)에 나타난 것처럼 렌즈를

그러면 광학현미경으로 물체를 볼 수 있는 해상도는 어떻게 주어질까? 이는 빛이 렌즈를 통할 경우 일어나는 회절 때문에 빛을 한 점으로 모을 수 없는 회절에 의한 한계로 주어진다. 회절 이론에 의하면 크기가 D인 렌즈를 통하여 구분할 수 있는 렌즈에 입사되는 빛의 최소 각 해상도 $\Delta\theta$ 는 $1.22\lambda/D$ 이고, 이미지의 공간 분해능은 렌즈로부터 이미지면까지 거리가 f일 때 $1.22\lambda f/D = 1.22\lambda$ (Numerical Aperture)로 주어진다. 따라서 가시광선 영역과 같이 파장이 비교적 긴 빛을 사용했을 때 이미지의 공간분해능은 제한될 수밖에 없고, 기존의 far field 방식으로는 마이크로미터 이하의 분해능을 얻기가 불가능하다.

나노과학기술에서 궁극적으로 요구되는 이미징기술은 10 나노미터 혹은 그 이하의 해상도를 가진 기술이다. 이러한 해상도를 구현하기 위해서 근접장(Near field)기술

【집】 X-선 회절-이미징

노도영*, 김상수*

사용하지 않고 회절된 빛을 직접 관측하는 것이라고 할 수 있다.

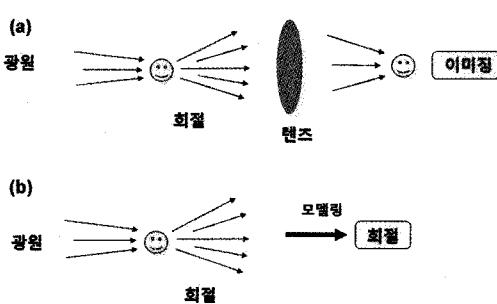
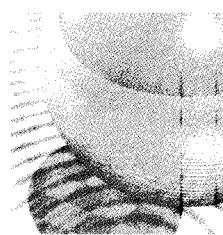


그림 1. 이미징과 회절의 차이점을 보여주는 개념도

등 다양한 방법이 연구되고 있지만 가장 직관적인 방법은 이미징에 사용되는 빛의 파장을 줄이는 것이라고 생각된다. 빛의 파장을 가시광선에 비해 약 1000배 줄이면, 가시광선 현미경이 보유하고 있는 해상도인 마이크로미터보다 1000배 작은 나노미터 수준의 해상도를 구현할 수 있을 것이다. 이와 같은 이유로 가시광선보다 약 1000배 정도 파장이 작은 X-선을 활용한 X-선 이미징 기술이 현재 많이 연구되고 있다. 그런데 파장이 X-선 영역으로 줄어들면, 거의 모든 물질의 굴절률이 1에 근접하게 되어 빛의 진행방향을 바꾸는 렌즈를 제작하는 것이 매우 어렵게 된다. 현재 X-선 zone-plate 등 다양한 X-선 렌즈가 개발되고 또 사용되고 있지만, 아직도 많은 경우 렌즈에 의해 제한을 받는다.

* 광주과학기술원



X-선 산란이나 회절 연구를 하는 연구자들은 그동안 회절패턴으로부터 시편의 구조를 유추하는 방법으로 연구를 진행해 왔다. 회절패턴을 측정할 때는 광원과 시편이 필요할 뿐 렌즈 등의 복잡한 광학계가 요구되지 않아 측정이 단순하고, 역격자 공간에서 측정하는 기술이므로 X-선 디텍터의 공간분해능과는 관계없이 원자스케일(0.1 nm 정도)의 정보를 유추해 낼 수가 있었다. 하지만 회절 패턴으로부터 시편의 전자밀도를 직접적으로 얻어내지 못하고 data fitting 등 modeling을 통하여 시편의 제한된 정보를 얻어내는 한계점이 있었다. 만약 회절패턴으로부터 직접적으로 시편의 전자밀도를 알아낼 수 있다면 회절 실험은 렌즈를 사용하지 않은 새로운 방식의 이미징 기술로 생각할 수 있다.

이 글에서는 결맞는 X-선(coherent x-ray)을 활용하여 회절패턴을 측정함으로서 물질의 전자밀도를 이미징하는 결맞는 X-선 회절 이미징의 원리에 대하여 간략하게 설명하고자 한다.

2. 결맞은 X-선 회절 이미징 원리

X-선과 물질을 구성하는 전자와의 상호작용은 매우 작다. 전자 1개에 의한 X-선 산란 cross-section은 약 10^{-24} cm² 정도인데, 이러한 이유로 대개의 X-선 회절 패턴은 다중 산란효과를 무시하고, 1차 산란인 Born 근사를 사용하여 설명할 수 있다. 이 근사에 따르면, 이상적인 X-선 회절패턴은 시편을 이루고 있는 전자 밀도의 푸리에 변환(Fourier transform)의 제곱으로 기술된다.

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

회절을 이용하여 물질의 전자밀도를 이미징한다는 것은 역격자 공간의 변수 \vec{q} 의 함수로 측정된 회절패턴 $S(\vec{q})$ 로부터 전자밀도 $p(\vec{r})$ 을 알아내는 것을 의미한다. 이것이 가능하다면 X-선의 짧은 파장을 고려할 때, X-선 회절은 현존하는 어떠한 이미징 기술보다도 해상도가 높은 고

분해능 이미징 방법으로 활용되는 것을 생각할 수 있다. 하지만, 대부분의 X-선 산란 실험에서 X-선 회절패턴을 분석할 때, fitting을 통하여 $p(\vec{r})$ 에 대한 부분적인 정보만을 얻어내는 것은 무엇 때문일까?

기존의 X-선 회절실험은 거의 모두 incoherent X-선을 광원으로 사용하여 행해진다. Incoherent X-선을 사용하면 시편의 모든 부분에서 산란되는 X-선이 간섭을 일으키지 못하고, coherent volume 내에서만 간섭이 일어나므로, 결국 시편의 각 부분 회절패턴의 양상을 평균값이 측정값이 된다.

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

이 평균값을 사용하여 원자구조의 공간상의 통계적인 분포인 density-density correlation 함수를 얻을 수 있고 이를 통하여 원자 간의 거리, 물질의 상태도, 결합의 통계적 성질 등 원자스케일의 다양한 정보를 통계적으로 얻을 수 있지만, 시편의 전자밀도를 직접적으로 이미징 하는 데에는 커다란 한계점이 있다.

X-선 회절 패턴으로부터 전자밀도를 알아내기 위해서는 실험적으로 결맞은 X-선을 가지고 회절패턴을 측정해야 한다. 방사광을 비롯한 대부분의 X-선광원에서 발생되는 X-선은 이상적인 평면파(plane wave)가 아니고 일정한 폭의 에너지(혹은 파장) 분포와 진행방향의 분포를 갖는 incoherent한 광원이다. 하지만 이러한 incoherent한 광원에서 발생한 빛도 광원과 멀리 떨어진 지점에서는 제한적인 coherent 성질을 보여주는데, 이러한 제한된 영역을 coherent volume이라고 한다. 빛이 진행하는 수직 방향의 transverse coherent length, L_T 는 광원의 크기(D)와 광원과 시편사이의 거리(L)에 의하여 $L_T = \frac{\lambda}{2} \left(\frac{R}{D} \right)$ 로 주어지고, 빛의 진행 방향의 longitudinal coherent length L_L 은 파장의 분포 ($\Delta\lambda$)에 의해 $L_L = \frac{1}{2} \left(\frac{\lambda^2}{\Delta\lambda} \right)$ 로 주어진다. 따라서 X-선에 조사되는 시편의 영역을 coherent length로 정의되는 coherent volume 내에 국한 시키면, 측정되는 회절패턴은 X-선이 조사되는 시편영

결맞는 X-선 회절-이미징

역의 전자밀도의 퓨리에변환의 제곱으로 근사될 수 있다. 현재 가동되고 있는 제 3세대 방사광 X-선팽원을 사용할 때 coherent volume 내로 조사영역을 국한시키기 위해서는 X-선빔을 약 20 마이크로미터 이내로 국한해야 하고, 빛의 진행방향의 시편의 크기는 5 마이크로 미터보다 작아야 한다.

X-선 회절패턴으로부터 이미지를 얻어내는데 있어 또 하나의 문제점은 X-선 산란을 통하여 측정한 $S(\vec{q})$ 가 전자밀도의 퓨리에변환인 X-선 전기장 E 그 자체가 아니고 전기장의 제곱 $|E|^2$ 이라는 것이다. 따라서 전기장의 위상정보는 측정하는 과정에서 잃어버리게 되고 단지 전기장의 크기만 측정하게 되므로 퓨리에 역변환에 필요한 정보가 부족하게 된다. 따라서 X-선 회절 이미징의 두 번째 단계는 이 잃어버린 위상을 복원하는 것이다.

그림 2는 결맞은 X-선 회절 이미징의 개요를 도식적으로 나타낸 것이다. 우선 방사광원과 같은 X-선 광원에서 결맞는 영역의 X-선을 선택하여, 시편에 조사한 후 시편에서 산란된 결맞는 X-선 회절 패턴을 정확히 측정한다. 측정된 회절패턴으로부터 컴퓨터 알고리즘을 사용하여 잃어버린 위상을 복원한 후, 이 위상과 측정된 amplitude를 가지고 퓨리에 역변환을 통하여 이미지를 재구성하는 것이 회절-이미징 기술의 요체이다.

4. 위상복원 알고리즘 :Oversampling

결맞는 X-선 회절-이미징의 가장 어려운 부분 중 하나는 결맞은 X-선 빔으로 측정된 회절패턴을 가지고 위상을 복원하는 것이다. 측정된 양이 전기장의 크기이므로 원리적으로 불가능하다고 생각할 수도 있지만 시편에 대한 일부 정보를 정확히 인다면, 나머지 부분의 위상은 회절패턴으로부터 복원할 수 있는 것이 최근에 보고되어 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 시편으로부터 측정된 회절 패턴의 제곱근은 다음과 같이 주어진다.

$$|F(K)| = \left| \sum p(l) e^{2\pi i k \cdot l L/N} \right|$$

만약 우리가 역격자 공간에서 시편의 크기(L)에 의하여 정의되는 Nyquist frequency $\frac{2\pi}{L}$ 의 정수배의 위치 즉 모든 $K_m = \frac{2\pi}{L} m \quad 0 < m \leq N-1$ 에서 측정한다면 우리는 N 개의 정보를 알 수 있다. 하지만 이미지를 재구성하기 위해서는 $2N$ 개의 (위상과 크기)의 정보가 필요하다. 이러한 모자란 정보를 보충하는 방법으로 역격자 공

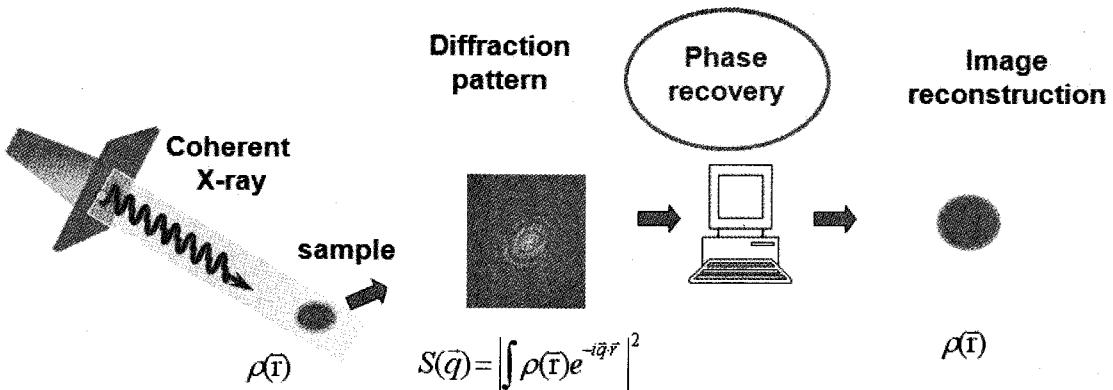
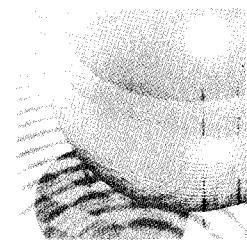


그림 2. Coherent X-선 회절 이미징 개략도



간에서 보다 더 높은 해상도로 촘촘하게 회절패턴을 측정하는 것을 생각할 수 있다. 예를 들어 각 $K_m = \frac{2\pi}{2L} m$ ($0 < m \leq 2N-1$)에서 회절패턴을 측정하면 $2N$ 개의 정보를 알게 되고 따라서 읽어버린 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 frequency $\frac{2\pi}{2L}$ 로 측정을 수행하는 실험에서, 시편의 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.

이러한 알고리즘의 진행방식은 다음과 같다. 임의의 초기 이미지 ρ 에 실공간에서 알고있는 정보, 즉 zero-density constraint π_s 를 적용한다. 즉 시편의 크기 내의 전자밀도는 초기 이미지 값을 사용하고, 그 밖의 전자밀도는 0으로 만드는 것이다. 다음 단계는 이렇게 project된 이미지 $\pi_s(\rho)$ 를 가지고 역격자 공간에서 측정된 회절패턴을 만족시키는 modulus constraint π_F 를 적용시킨다. 위상은 $\pi_s(\rho)$ 의 퓨리에 변환으로부터 구하고, 크기는 측정된 회절패턴 값을 사용한 후 퓨리에 역변환하여 ρ' 을 구하는

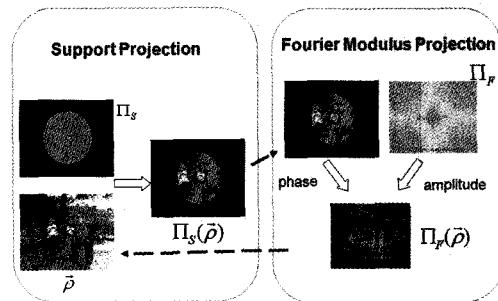


그림 3. Iterative 이미지 재구성 알고리즘 개략도

것이다. 이후 ρ' 을 새로운 trial값으로 하여 실공간 constraint와 역격자 공간 constraint를 반복하여 적용함으로서, 점차적으로 실공간과 역격자 공간의 constraint를 모두 만족하는 이미지를 재구성하는 것이 iterative 알고리즘의 주요 구성이다. 그림 3은 이와 같은 알고리즘을 개략적으로 보여주고 있다.[2]

효율적인 이미지 재구성을 위한 여러 가지 실질적인 위상복원 알고리즘이 제안되어 있는데 각 위상복원 알고리즘의 행동을 결정하는 것은 바로 zero density region에 접근하는 방식에 관한 것이다. 초기에는 zero density region에 바로 zero 값을 대입하는 방법을 사용했으나 이 방법의 경우 구하고자 하는 density region의 값이 참값과 달라도 반복 iteration 중에도 더 이상 density region의 값이 개선이 되지 않는 이른바 stagnation 문제에 자주 봉착하게 된다. 이를 극복하기 위해서 zero density region에 바로 zero 값을 대입하는 대신 반복 iteration 중에 zero density region의 값을 조금씩 zero에 수렴하게 함으로써 density region의 stagnation 문제를 피하고 참값에 수렴할 수 있게 위상복원 알고리즘이 제안되고 있고 대표적인 것으로는 HIO(hybrid input-output)알고리즘[3]과 difference map[4] 등이 있다.

HIO(hybrid input-output)의 경우 간단하면서도 강력하여 가장 널리 쓰이는 위상복원 방법이다. 역격자 공간에서의 modulus constraint π_F 는 동일하지만 실공간에서의 constraint가 다르며 control theory에서의 input-

결맞는 X-선 회절-이미징

output 이론의 혼합(Hybrid Input-Output)으로 이루어 져 있다. 이를 반복구문으로 나타내면 다음과 같다.

$$S(\vec{q}) = \begin{cases} \pi_F(p(\vec{r})) & r \in S \\ \vec{p}_n(\vec{r}) - \beta \cdot \pi_F(p(\vec{r})) & r \notin S \end{cases}$$

이 방법의 핵심은 zero-density region의 경우 input value($p(\vec{r})$)와 output value($\pi_F(p(\vec{r}))$)의 차이를 대입 함으로써 서서히 zero에 접근시키고 접근속도는 β 값으로 결정하는 데 보통 0.5~1.0사이의 값을 취한다. 반면에 nonzero density region의 경우 output value의 값을 넣어 iteration이 실행될 때마다 원칙적으로는 보다 참값에 가까운 이미지 정보를 얻을 수 있다. 그러나 실제로는 여러 가지 이유로 stagnation 문제에서 완전히 자유롭지 못하다.

이러한 stagnation 문제를 해결하기 위해 고안된 방법이 difference map이다. Difference map은 앞에서 정의된 modulus constraint인 π_F 와 real constraint에 해당하는 π_S 의 차이를 나타내는 연산자를 정의하여 stagnation 문제를 상당부분 해결하였는데 이 차이를 나타내는 연산자△는 다음과 같이 정의된다.

$$\Delta = \pi_S \circ [(1 + \gamma_2) \pi_F - \gamma_2] - \pi_F \circ [(1 + \gamma_1) \pi_S - \gamma_1]$$

이때 γ_1 와 γ_2 는 한자리수의 실수이며 연산자 Δ 의 크기를 결정한다. 이 연산자를 이용하여 최종적으로 수행되는 반복구문은 아래와 같다.

$$\vec{p}_{n+1} = \vec{p}_n + \beta \Delta \vec{p}_n \quad (\beta \text{는 실수})$$

반복을 하면 할수록 $\Delta \vec{p}_n$ 은 zero에 수렴하게 되어 결국 참값에서는 움직이지 않게 된다. Difference map은 HIO에 비해 복잡하지만 수학적 이론에 근거하므로 매우 일반적이며 융통성 있게 행동을 하고 HIO방법에서 자주 마주치는 stagnation 문제를 상당부분 해결하였다.

3. 현재까지 진행된 연구 소개

Coherent X-선 회절 이미징 기술은 1980년 Sayre[5]에 의해 처음 제안되었다. 그 후 1999년이 되어서야 Miao가 X-선 회절 이미징 실험에 성공하였다.[1] 그림 4는 X-선 회절 이미징 기술의 우수성을 보여준다. 그림 4.a의 경우는 SEM으로 본 이미지인데 표면의 구조만 드러날 뿐 내부의 구조를 관찰 할 수가 없다. 반면에 Coherent X-선 회절 패턴을 측정한 후 (그림4.b) 위상복원 알고리즘을 이용하여 복원한 이미지의 경우(그림4.c) 나노물체의 내부 구조까지 볼 수가 있다. 특히 토모그래피 방법으로 3차원 회절패턴을 얻으면 위에서 언급한 위상복원 알고리즘으로 3차원 입체 영상을 복원할 수 있는데 이를 보여주는 것이 그림4.d이다. 고휘도의 결맞음 X-선을 세계의 여러 기관에서 이용할 수 있음에 따라 현재 가장 이슈가 되고 있는 연구테마는 바로 바이오샘플의 이미징이다. 박테리아나 단백질등의 바이오샘플의 내부구조를 원자스케일의 해상도로 볼 수 있다면 생명과학에 획기적인 발전을 가져오기 때문에 매우 중요한 이슈라고 할 수 있다. 반면에 coherent X-선 회절 이미징 기술은 아직 초기단계에 있어 실제로는 많은 실험적 어려움을 가지고 있다. 특히 파장이 0.1 nm 정도로 짧은 경 X-선의 경우 X-선을 coherent 한 영역에 국한시키거나 zero-density영역을 구현하는데 있어 많은 실험적 어려움이 따르고 있고, 회절패턴을 효율적으로 측정하기 위한 CCD검출기에도 제약이 따르고 있

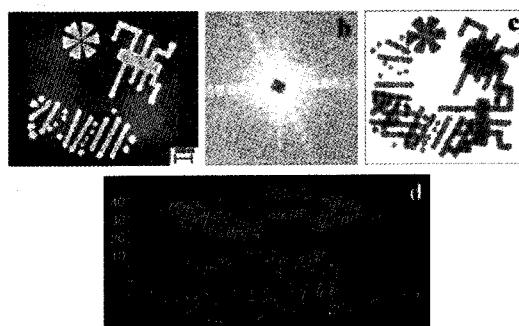


그림 4. 3차원 X-선 회절 이미징

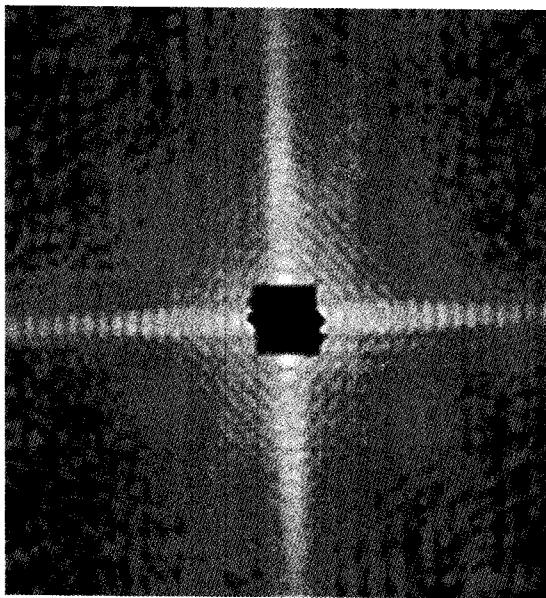


그림 5. 사각형 금입자의 회절 패턴

다. 현재 세계적으로 X-선 회절-이미징 기술의 이미지 해상도는 7 nm에 근접하여 있는 상황이다.

그림 5는 전자빔 리소그라피로 제작된 약 1마이크로미터 크기의 사각형 금입자에 의한 coherent X-선 산란 패턴이다. 이 자료는 미국의 Advanced Photon Source을 이용하여 얻는 것으로 사각형의 입자로부터 예상되는 coherent X-선 회절패턴을 잘 보여주고 있다.

이러한 회절패턴으로부터 고해상도의 이미지를 재구성하는데 어려운 점은 자료에서 보는 것처럼 중앙부분의 회절패턴을 측정하기가 쉽지가 않다는 사실이다. 정중앙 부분은 회절되지 않은 X-선 빔과 샘플에서 회절된 빔이 동시에 입사되기 때문에 사실상 데이터로 사용할 수 없는

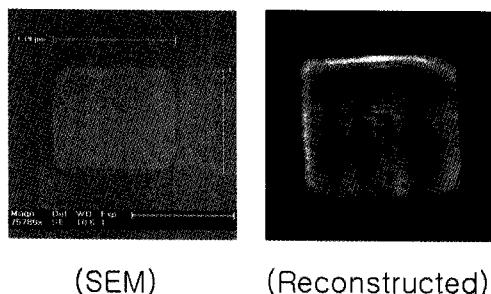


그림 6. 시편의 SEM이미지와 재구성된 이미지

곳이고 중앙부근의 회절패턴의 경우는 매우 작은 소각의 영역이어서 종종 슬릿에서 나오는 parasitic scattering으로 인해 샘플의 회절패턴이 더럽혀지기 쉽기 때문에 주의를 하지 않으면 이미지를 복원하는데 어려움을 겪게 된다. 그럼 6은 이 회절패턴을 사용하여 재구성된 coherent x-선 회절 이미지 결과를 SEM이미지와 비교하여 나타낸 것이다.

5. 결론

방사광가속기의 X-선 발생기술이 발달함에 따라 coherent x-선 회절이미징의 응용도 점점 커질 것이다. coherent x-선 회절 이미징에서의 가장 큰 이슈는 역시 나노미터이하의 해상도를 어떻게 구현하느냐에 있다고 해도 과언이 아닐 것이다. coherent x-선 회절 이미징의 경우 렌즈를 사용하지 않기 때문에 렌즈수차에 제한이 없고 원리적으로 나노미터 이하의 해상도를 구현할 수 있는 궁극적인 광학적 이미징 기술이다. 다만 실험적으로 이러한 해상도를 구현하기 위해서는 높은 잡음대비신호검출 기술(High Signal-to-Noise Ratio)을 구현하여 매우 넓은 범위의 회절패턴을 얻을 수 있어야 하며 장시간의 X-선 조사에 따른 샘플의 데미지를 최소화 할 수 있는 방법을 발전시켜야 할 것이다. 특히 바이오 샘플의 경우는 해상도가 거의 X-선 조사에 의한 샘플의 데미지에 의해 결정되므로 샘플을 안정적으로 냉각시키는 기술이 필수적일 것이다. 이러한 기술은 궁극적으로 단백질과 같은 단일 바이오 분자를 이미지할 수 있는 방법으로 발전할 것으로 전망된다. 제 4세대 방사광가속기와 같이 개선된 방사광 광원은 레이저와 같이 고도의 coherent 특성을 가진 X-선 빔을 제공할 것으로 예상되고 있고, 더욱 개선된 이차원 X-선 검출기도 개발되고 있는 상태이다. 따라서 coherent X-선 회절 이미징 기술의 비약적인 발전이 기대되고 이를 이룩하기 위한 기초연구와 이 기술을 다양한 나노-바이오 시스템에 적용하기 위한 응용기술의 개발이 더욱 필요한 시점이다.

참고문헌

- [1] J. Miao, P. Charalambous, J. Kirz, D. Sayre, *Nature* 400, 342 (1999)
- [2] S. S. Kim, S. Marathe, S. N. Kim, H. C. Kang, and D. Y. Noh, *Thin Solid Films* 515, 5568 (2007)
- [3] J.R. Fienup, *Appl. Opt.* 21, 2758 (1982)
- [4] J.R. Fienup, C.C. Wackerman, *J. Opt. Soc. Am. A* 3, 1897, (1986)
- [5] D. Sayre in *Imaging Processes and Coherence in Physics*. Springer Lecture Notes in Physics, vol.112, M. Schlenker et al., Eds. (Berlin: Springer, 1980) pp. 229-235.
- [6] J. Miao, T. Ishikawa, B. Johnson et al., *Phys. Rev. Lett.*, 89 , 088303 (2002).

학 턱

노도영

근무처
광주과학기술원

최종학력
1991년 MIT 물리학 박사학위

김상수

근무처
동 대학원 박사과정

최종학력
2001년 광주과학기술원 석사학위