위상절연체의 검증 및 특성 규명

DOI: 10.3938/PhiT.20.008

노한진·박승룡·김창영

Experimental Confirmation and Characterization of Topological Insulators

Han-Jin NOH, Seung-Ryong PARK and Changyoung KIM

Angle resolved photoelectron spectroscopy (ARPES) can be utilized to verify the existence and investigate the properties of topological insulators (TIs). The most important traits of TIs (existence of bulk gaps and odd number of surface state Fermi level crossings) have been verified for various TIs, providing the first and most direct evidence for TIs. Spin resolved ARPES confirmed the helical spin structures in surface states and gave solid evidence for the existence of TIs. We further describe recent studies on the quasi-particle dynamics in the topological metallic states and massive Dirac Fermions (opening of a gap at the Dirac point) due to time reversal symmetry breaking by magnetic impurities.

들어가는 글

최근 고체물리학계에서 초미의 관심사로 떠오른 위상절연

저자약력

노한진 교수는 서울대학교 이학박사(2003)로서 포항공대, 럿거스 대학, 포항공대에서 각각 박사후 연구원을 거쳐 2006년부터 전남대학교 물리학과에 재직 중이다. (fhnj@chonnam.ac.kr)

박승룡 박사는 연세대학교 물리학 박사(2009)로서 현재 콜로라도대학교 박사후 연구원으로 있다. (Abe.S.Park@Colorado.EDU)

김창영 교수는 스탠포드 대학교 응용 물리학 박사(1995)로서 스탠포드 방사광 가속기 연구소 연구원을 거쳐(1995-2001) 현재 연세대학교 물리학과 교수(2001-현재)로 재직 중이다. (changyoung@yonsei.ac.kr)

체(topological insulator) 관련 연구 진행상황을 지켜보고 있으면 1929년 Bloch에 의해 그 열개가 완성되어 더 이상 새로운 것이 없어 보이는 띠 이론(band theory)에도 비어 있는 자리가 있었다는 사실에 새삼 놀라게 된다.^[1] 그 비어 있는 자리란 바로 고체 물질계가 가질 수 있는 위상학적 질서(topological order)를 가리킨다. 오랫동안 응집물질 물리학계에서는 증명되지는 않았지만 참일 것이라 믿는 명제가 몇 개 있는데, 그 중 하나가 소위 ‘란다우 상전이 이론’이다. 그 내용은 어떤 응집 물질계가 갖는 상(phase)은 그 계가 갖는 대칭성을 기술하는 질서들(orders)이 결정한다는 것인데, 이에 따르면 계가 갖는 대칭성이 달라지면 해당하는 질서들도 달라지므로 다른 상으로 바뀌게 됨을 의미한다. 예를 들어 물과 얼음의 상태 차이는 물 분자 집합이 갖는 등방성(isotropy)이 깨지고 연속적인 균질성(homogeneity)은 불연속적인 값에 대해서만 만족하는 얼음 상태로 바뀔 때 따라 생기는 차이로 볼 수 있다. 상전이에 대한 이러한 견해는 매우 성공적이었지만, 최근에 그 존재가 알려진 위상절연체와 일반 부도체의 경우는 이러한 견해에서 보자면 대칭성의 차이가 없는 경우에 해당된다. 즉, 위상절연체를 기술하는 질서는 지금까지 고려해 왔던 질서들과는 다른 새로운 종류의 질서임을 의미한다.

본 소개 논문에서는 근 80년 동안 응집물질 물리학에서 인지하지 못하고 있었던 이 위상학적 질서(topological order)가 부여한 물질의 새로운 상태인 위상절연체를 실험적으로 확인하는 데 크게 활약한 각분해 광전자 분광학(angle-resolved photoemission spectroscopy, 이하 ARPES라 칭함)에 대한 개략적 설명 및 검증 내용에 대하여 설명하려 한다. 또한 검증 이후에도 ARPES를 이용한 연구는 터널 주사 현미경(scanning tunneling microscopy, STM)과 함께 위상절연체의 특성 규명에도 많은 기여를 하고 있어서, 이에 대한 간단

REFERENCES

- [1] F. Bloch, Z. Physik **52**, 555 (1929).

Fig. 1. Schematic view of angle resolved photoemission.

한 소개도 곁들이고, 이 분야에 대한 향후 전망으로 글을 마무리 한다.

각분해 광전자 분광학 (ARPES)

ARPES는 고체 안의 전자 띠 구조, 즉 고체 내부에 구속된 전자들의 상태 에너지와 운동량의 관계를 직접 측정할 수 있는 실험 방법으로서 기본적으로 아인슈타인의 ‘광전 효과’를 응용한 실험 기법이다. 그림 1에 개략적으로 나타낸 바와 같이, 초고진공 환경에서 관심 대상의 시료에 충분한 에너지의 단색광을 쏘이면, 입사된 광자는 시료 안에 구속된 전자와 상호작용하여 소위 ‘광전자 방출(photoemission)’ 과정을 일으킨다. 이 과정은 일종의 충돌과정으로서 충돌 후 광자는 사라지고 광자의 에너지와 운동량이 모두 전자에게 전달된다. 따라서 이 과정에 참여한 전자는 갑자기 높은 에너지 상태에 이르게 되고, 이 에너지가 고체 시료의 구속 에너지보다 크면 시료의 외부로 튀어 나올 수 있게 된다. 이러한 전자를 광전자(photoelectron)이라 부르며, 이 광전자의 에너지와 방출각을 전자 분광기를 이용하여 측정하면 그 광전자가 고체에 구속되어 있을 때의 에너지를 알 수 있고, 방출각으로부터 시료 표면에 수평한 방향의 운동량도 알 수 있게 된다. 이때 광전자의 운동량은 고체 내부 상태의 운동량으로 간주할 수 있는데, 그 이유는 일반적인 ARPES 실험에 사용되는 광원 영역 (자외선 ~ 연 X-선)에서 광자의 운동량은 전자의 그것에 비해 아주 작기 때문이다. 현재 상용의 각분해 전자 분광기는 대략 $\pm 10^\circ$ 범위의 광전자를 0.1° 각분해능, 1 meV 에너지 분해능으로 분석할 수 있어 ARPES가 고체 결정계의 전자 띠 구조를 탐구하는 데 많은 기여를 하고 있다.^[2]

그런데 이 과정에서 한 가지 주목해야 할 점은 ARPES에서 전자구조를 측정하는 광전자는 방출 과정에서 고체 안의 다른 어떤 것들과도 충돌하지 않고 나오는 1차 광전자라는 것

Fig. 2. Schematic surface band structures of (a) normal and (b) topological insulators.^[3]

이다. 고체 안쪽 깊은 곳에서 나오는 광전자는 대부분 고체 바깥으로 나오는 과정에서 고체 안의 다른 입자와 충돌하고 에너지와 운동량이 변화되어 광전자가 본디 가지고 있던 정보를 잃게 된다. 이러한 2차 광전자들은 ARPES 데이터상에서 특정한 구조를 갖지 않는 배경 신호(background signal)를 이룬다. 결국, ARPES는 표면에 민감한 측정법일 수밖에 없고, 대부분 표면 가까이 있는 전자의 상태를 보게 된다. 적외선 분광학이나 전자 수송 실험과는 다르게, ARPES의 표면 민감성은 고체 덩지(bulk)의 전자 구조를 연구하는 경우에는 단점으로 작용하지만, 표면에 특징적인 금속적(metallic) 전자 상태가 존재해야만 하는 위상절연체를 실험적으로 검증할 때는 결정적인 장점으로 작용하게 된다.

위상절연체의 실험적 검증

Kane 등에 의하여 정립된 위상학적 전자 띠 이론(topological band theory)의 핵심을 요약하면, 띠 절연체(band insulator)의 경우 채워진 전자 상태를 기술하는 파동함수들로 이루어진 집합으로 어떤 위상학적 불변량을 정의할 수 있는데, 이 불변량이 두 종류의 정수 값만 가능하여 Z_2 라고 표기한다. (Z 는 정수, 2는 그 값이 두 종류임을 의미한다.) 여기서 두 종류의 정수만 가능하다는 사실이 물리적으로 무엇을 의미하는지는 여러 가지 방식으로 표현이 가능하지만 시간 역전 대칭성(time reversal symmetry, TRS)을 가진 시스템의 표면상태와 연관 짓는다면 표면상태의 에너지 띠들 간의 연결 구조가 두 종류라는 것을 의미하게 된다. 그림 2는 이 상황을 개략적으로 나타내고 있다. 고체의 표면에서는 반전 대칭성(inversion symmetry)이 깨지기 때문에 Kramers 중첩

REFERENCES

- [2] A. Damascelli *et al.*, Rev. Mod. Phys. **75**, 473 (2003).
- [3] M. Z. Hasan and C. L. Kane, Rev. Mod. Phys. **82**, 3045 (2010).

Fig. 3. Experimental band structures of the surface states on (a) $\text{Bi}_{0.9}\text{Sb}_{0.1}$ and (b) Bi_2Te_3 .^[4,5]

(Kramers degeneracy)도 깨지게 된다. 즉, 고체 시스템이 표면상태를 갖는다면 스핀 상태에 따라 다른 에너지 분산을 갖게 된다. 하지만 이 경우에도 고체 결정계의 주기성 때문에 시간 역전 연산에 대해 불변하는 특정한 운동량(time reversal invariant momenta, TRIM) 지점(그림의 Γ_a 와 Γ_b)이 반드시 존재하고, 이러한 TRIM 지점에서는 비록 표면상태라 하더라도 Kramers 중첩이 존재한다. 위 제한조건 하에서 한 TRIM에서 다른 TRIM으로 연속적인 연결을 시도할 때 가능한 띠 분산 구조는 그림 2의 (a) 혹은 (b) 두 가지뿐이다. 즉, 그 위상학적 불변량이 0인 경우는 up 스핀과 down 스핀 띠가 짝으로 존재함을 뜻하고 (이것이 일반적인 띠 절연체이다.) 1인 경우는 둘 중 하나가 남는 경우(위상절연체)를 의미하게 된다. 흥미로운 점은 (b)의 경우는 페르미 준위를 통과하는 표면 상태가 반드시 존재할 수밖에 없으며 또한 반드시 홀수의 페르미점이 존재하게 된다.

그렇다면 위상절연체의 존재를 실험적으로 검증하려면 무엇을 관측해야 하는가? 위에서 요약한 위상학적 에너지 띠 이론에 따르면 보통의 부도체에서는 페르미 준위의 변화에 따라서 금속적인 표면 상태가 존재하지 않을 수도 있지만 위상절연체에서는 페르미 준위를 변화시킨다고 하더라도 시간 역전 대칭이 깨지지 않는 한 적어도 한번은 페르미 준위를 통과하는 금속적 표면 상태가 반드시 존재하게 된다. 결론적으로 고체의 표면 전자 에너지 띠의 스핀 중첩이 깨져 있고,

Fig. 4. (a) Spin resolved APRES data of Bi_2Te_3 . (b) Fermi surface map of Bi_2Te_3 . (b) Red arrows show the spin directions of surface state electrons.^[6]

TRIM 지점 사이에서 페르미 준위를 홀수 번 통과함을 ARPES로 관측한다면 위상절연체임을 검증할 수 있다.

이와 같은 방식으로 2008년 Hsieh 등에 의하여 $\text{Bi}_{0.9}\text{Sb}_{0.1}$ 가 위상절연체임이 처음 실험적으로 검증되었다.^[4] $\text{Bi}_{0.9}\text{Sb}_{0.1}$ 고체의 덩지는 에너지 틈을 가지고 있으면서도 그림 3(a)에서 볼 수 있는 것과 같은 금속적 표면 전자 상태를 갖는다. 그리고 TRIM인 Γ 와 M 사이에서 표면 전자 띠가 페르미 준위를 5번 통과하는 것을 확인하였다. 이렇게 표면 전자 에너지 띠가 페르미 준위를 홀수 번 통과하는 것은 $\text{Bi}_{0.9}\text{Sb}_{0.1}$ 물질이 위상절연체임을 보여준다. 이후 그림 3(b)에서 보여주듯이 Bi_2Se_3 , Bi_2Te_3 , Sb_2Te_3 등은 TRIM인 Γ 와 M 사이에서 표면 전자 에너지 띠가 페르미 준위를 1번 통과하는 위상절연체임이 실험적으로 밝혀졌다.^[5] 특히 이런 물질들은 덩지의 에너지 틈이 충분히 커서 상온에서도 표면 전자 상태만 전자 수송에 참여하도록 적절히 재단한다면, 위상절연체의 금속적 표면 전자 상태를 이용한 전자 재료를 구현할 수 있는 가능성

REFERENCES

- [4] D. Hsieh *et al.*, Nature **452**, 970 (2008).
- [5] Y. L. Chen *et al.*, Science **325**, 178 (2009).
- [6] D. Hsieh *et al.*, Nature Phys. **460**, 1101 (2009).

을 보여준다.

위상절연체의 표면 전자 상태는 일반 부도체의 그것과 비교하면 몇 가지 특이한 성질을 갖는다. 표면 상태는 반전 대칭성이 깨져있어 스핀 중첩 역시 반드시 깨져 있어야 한다. 더욱이 페르미 준위를 홀수 번 통과해야 하므로 짝을 이루지 못하고 남은 에너지띠는 특정한 스핀 방향을 가지게 되는데, 이것을 스핀 분해 ARPES를 통해서 측정할 수 있다. 그림 4(a)는 위상 부도체인 Bi_2Te_3 의 페르미 준위 근처에서 스핀 분해 ARPES 데이터를 보여주고 있다. up 스핀 상태를 측정 한 빨간색 삼각형 데이터는 $-0.1 \text{ \AA}^{-1}$ 에, down 스핀 상태를 측정 한 파란색 삼각형 데이터는 $0.1 \text{ \AA}^{-1}$ 에 봉우리가 있다. 이것은 운동량이 서로 반대 방향인 표면 전자는 스핀의 방향 또한 정반대임을 보여준다. 결론적으로 페르미 준위에서 표면 전자의 스핀 방향은 그림 4(b)의 빨간색 화살표의 방향과 같이 표면에 평행하면서 운동량에 수직방향임이 스핀 분해 ARPES를 통해서 밝혀졌다.^[6] 이 결과는 표면 전자가 자성을 포함하지 않는 불순물에 의해서는 후방산란이 일어날 수 없음을 의미한다.

위상절연체의 특성 규명

전술한 바와 같이 위상 부도체의 고유 특성이 페르미 준위를 통과하는 표면 상태 구조에 반영된다는 사실과 ARPES가 전자구조를 직접 관측할 수 있으며 표면에 민감하다는 이유로 인하여 3차원 위상절연체의 검증에 큰 공헌을 해왔다. 하지만 검증 이후에도 ARPES만이 관측할 수 있는 고유 영역이 많이 있어서 이를 이용한 특성 규명 작업도 계속해서 진행되고 있다. 이 방향으로의 연구는 크게 두 가지로 나눌 수 있는데, 하나는 위상절연체의 수송특성을 표면상태가 지배하도록 하기 위하여 그 덩지에 여러 가지 방법으로 도핑을 하여 디락점을 페르미 준위 근방에 오도록 재단하면서 ARPES로 확인하는 것이고, 다른 하나는 위상절연체의 표면에 불순물 혹은 다른 물질로 계면을 만든 후 위상절연체의 표면상태 변화를 ARPES로 추적하는 방법이다.

첫째 방법에 의한 연구는 초기 위상절연체에 대한 이론적 연구의 대부분이 디락점이 페르미 준위에 아주 가까이 있는 상황에 대해서 수행되었기 때문에 더욱 중요해진 면이 있다. 더욱이 소위 2세대 위상절연체라 분류되는 Bi_2Se_3 , Bi_2Te_3 , Sb_2Te_3 등의 화합물은 Se 혹은 Te 자리에 자연적으로 존재 하는 빈자리(vacancy) 때문에 p형으로 도핑되는 경향이 있다. 이러한 문제점을 Hsieh 등은 Ca을 소량 첨가한 Bi_2Se_3 화합물을 만듦으로써 해결했는데, 소량의 Ca은 Se 빈자리를 채우고 전자를 내놓아 페르미 준위가 샘플의 에너지 틈 사이로

Fig. 5. Surface Fermi level control by NO_2 adsorption on Bi_2Se_3 . NO_2 takes electrons from the surface, which can be utilized to make the system to be in the topological transport regime.^[6]

위치하도록 해준다.^[6] 표면의 불순물 또한 표면 페르미 준위를 변화시킬 수 있는데, 그림 5에서 보듯이 이들은 Bi_2Se_3 의 절개면에 의도적으로 NO_2 가스를 노출시켜 조절하여 표면 페르미 준위를 디락점에 일치시킬 수 있음을 구현해 보였다. 이것은 샘플의 수송 특성을 위상절연체의 표면상태가 지배하도록 하기 위한 중요한 전제조건 하나를 만족시킬 수 있음을 보여주는 것으로 위상절연체 연구가 응용 분야로 확대되는데 큰 의미를 갖는다.

둘째 방향으로의 연구는 응용성보다는 위상절연체의 표면 상태 자체의 특성과 보다 밀접히 관련되어 있다. 위상절연체의 전도성 표면상태를 ARPES로 관측하게 되면 이 표면상태들의 행태가 일반적인 전자 띠 구조의 그것과 다른 면이 나타난다. 전도성 표면상태는 샘플의 위상구조와 진공의 위상구조가 다름에서 오기 때문에 위상학적 이유가 그 존재를 보장하는 것이어서 표면에 존재할 수 있는 다양한 종류의 약한 건드림(perturbation)에 강한 내성을 보여야 한다. 또한 Kramers 중첩이 깨진 상태이기 때문에 표면상태에 존재하는 광구멍(photohole)은 덩지 상태보다 낮은 산란율이 기대된다. Park 등은 그림 6(a)와 (b)에 보인 바와 같이 Bi_2Se_3 의 깨끗한 절개면과 초고진공하에서 4일 정도 지난 절개면에 대해 각각 ARPES 분산 이미지를 얻어 분석하였다.^[7] 자연적으로 달라붙는 잔여 가스 분자들은 표면 산란점을 만들게 되나 이들은 표면상태의 광전자 분광 스펙트럼에 크게 영향을 주지 않아 위상절연체의 표면상태가 외부의 약한 건드림에 잘 견뎌 있음을 보여주었다. 또한 표면상태의 선풍을 측정하여 (그림 6(c), (d) 참조) 이들의 에너지 의존성을 전자-구멍 쌍생성 및 포논+불순물에 의한 덩지 전자 산란 효과로 설명할 수 있음

Fig. 6. Metallic surface band dispersions measured by ARPES for (a) fresh Bi_2Se_3 (111) surface and (b) four day aged one. (c) Line width profiles of the ARPES data. (d) Analysis of the line width profile in terms of electron-hole pair creation and phonon plus impurity channels.^[7]

을 보였다.^[7]

전도성 표면상태의 표면 불순물에 대한 반응 연구는 위상 절연체의 근본적 특성을 시험할 수도 있다. 앞 절에서 설명했듯이 위상절연체의 전도성 표면상태의 존재는 위상학적인 이유로 보장이 되며, 이 위상학적인 이유의 핵심 중 하나는 위상절연체가 TRS를 가지면 반드시 디락점이 존재해야 한다는 사실에 있다. 그렇다면 TRS를 깨뜨리면 어떻게 될까? 당연히 디락점이 사라질 수 있게 된다. 위상절연체의 표면에서 TRS를 깨는 가장 편리한 방법은 자성불순물을 표면에 증착시키는 것이다. 이렇게 되면 디락점은 스핀 값에 따라 갈라지게 되고, 꼭짓점이 맞닿아 있던 두 개의 원뿔은 서로 떨어져 에너지 틈이 생기게 될 것이다. Hsieh 등은 이러한 생각을 그림 7에서처럼 Bi_2Se_3 절개면에 Fe 원자를 1 % 이하의 아주 소량 증착시킨 후 ARPES 실험을 통하여 확인하였다.^[8] 하지만 이 변화가 아주 명확한 것은 아니어서 여러 시스템에 대해 심도 있는 실험이 필요한 상태이다.

나오는 글

지금까지 ARPES를 이용한 위상절연체의 존재 확인 및 그 특성 분석 연구들에 대하여 개략적으로 소개하였다. 현재 이 분야 연구 동향은 새로운 위상절연체를 탐색하는 작업과 함께 이것을 이용한 새로운 개념의 소자 설계/제작의 가능성을 타진하는 단계에 있다. 물론 이 단계에서도 ARPES가 기여할 수 있는 부분은 여전히 많이 남아 있다. 예를 들어 덩지는 초

Fig. 7. (a) Response of the metallic surface states of Bi_2Se_3 to magnetic Fe surface impurities. Less than 1 % Fe surface impurities open a gap at the Dirac point. (b) The surface band dispersion changes from a linear dispersion to parabolic one as magnetic surface impurities increase.^[3]

전도체이면서 전도성 표면상태를 가지는 위상초전도체를 찾는 분야는 최근 Hor 등이 Bi_2Se_3 의 층간에 구리 원자를 삽입 시키게 되면 약 1 K 정도에서 초전도성을 보임을 발표하여 매우 활기를 띠고 있는데, 이러한 신물질에 대한 전자 구조 연구는 언제나 매우 중요한 주제가 된다.^[9,10] 또한, 표면 불순물에 대한 전도성 표면상태의 반응성 연구는 이제 겨우 하나의 시스템에 대해서만 수행된 것이어서 지속적인 실험 수행이 요구되는 상황이라 하겠다. 관심 있는 연구자들의 많은 참여를 기대해 본다.

REFERENCES

- [7] S. R. Park *et al.*, Phys. Rev. B **81**, 041405(R) (2010).
- [8] L. Wray *et al.*, Nat. Phys. **7**, 32 (2011).
- [9] Y. S. Hor *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104**, 057001 (2010).
- [10] L. Wray *et al.*, Nature Phys. **6**, 855 (2010).