그래핀에서의 Landau 준위

DOI: 10.3938/PhiT.20.014

송 영 재

Landau Levels in Graphene

Young Jae SONG

Local electronic structures of graphene studied by scanning tunneling spectroscopy are briefly discussed. Linear band dispersion as well as charge puddle caused by impurity scattering is revealed in graphene sample prepared on an insulating film. By changing voltage of back-gate under an insulating film, the spatial and energetic locations of Dirac point can be mapped. With strong magnetic field up to 14 T, Landau levels, electron localization, and quartet states are measured. Electron correlation effects result in the splitting of Landau levels not only with even filling factors but also odd filling factors.

들어가는 글

흑연(graphite)의 단일층(monolayer)인 그래핀(graphene)은 물리학적으로도 매우 중요하고 흥미로운 새로운 물성을 가지고 있으면서,^[1] 또한 차세대 전자 소자 재료로서의 가장 주목을 받는 신재료이다.^[2] 2004년 영국 맨체스터 대학팀이 처음으로 분리에 성공^[3]한 이후 물리학, 화학, 재료과학 및 전자공학과 같은 다양한 분야에서 깊이 있는 연구가 전 세계적으로 급속히 이루어지고 있다. Rudolf Ernest Peierls와 Lev Landau의 이론 물리학적 계산에 의해 자연계에는 안정적인 1차원 혹은 2차원 전자 구조를 가질 수 없는 것으로 알려졌다

저자약력

송영재 박사는 서울대학교 이학박사(2006)로서 미국 NIST(National Institute of Standard and Technology)에서 박사후 연구원으로 있다. 10 mK에서 동작하는 세계 최고 극저온 STM을 제작하여 그래핀 실험을 수행했다. (oberon2@gmail.com)

Fig. 1. (a) Schematic of graphene structure. Red color indicates carbon atom A in a unit cell, and blue does B. Orange-colored hexagon shows a single unit cell including two indistinguishable carbon atoms A and B. (b) Energy dispersion of graphene in energy-momentum space. Both of the conduction band and the valence band meets single points at each K point of Fermi level, which is called Dirac point. Near these K points of Fermi level, this shows a linear dispersion relation.

다. 오랫동안 불가능하다 여겨왔던 안정적인 2차원 전자 구조가 그래핀 그리고 그 직후에 밝혀진 위상 부도체(topological insulator)에서 비로소 가능하게 되었다. 이 신물질에 대한 중요도는 결국 발견된 지 만 6년만에 2010년 노벨 물리학상 수상으로 증명이 되었다.^[4]

유일한 구성 성분인 탄소(C)의 비슷한 화학적 결합 형태를 공유하고 있기에 0차원 형태의 풀러렌(C_{60})과 1차원 형태의 탄소 나노튜브(carbon nanotube)의 모체로 여겨지는 그래핀은 탄소 원자들이 단일 원자층(atomic monolayer) 두께를 유지한 채 벌집구조 모양으로 2차원 형태로 이루어져 있다(그림 1(a)). 이와 같은 그래핀의 구조적 특성이 Klein paradox, half-integer quantum Hall effect, 그리고 graphene quartet states

REFERENCES

- [1] S. Seo, Phys. High Tech. **19**(12), 6 (2010).
- [2] J. Ahn, Phys. High Tech. **19**(12), 11 (2010).
- [3] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva and A. A. Firsov, Science **306**, 666 (2004).
- [4] B. H. Hong, Phys. High Tech. **19**(12), 2 (2010).

등과 같은 그래핀의 모든 특이 물리 현상을 가능하게 하는 두 가지 주된 물성의 근간이 된다. 첫 번째 주된 그래핀 주요 물성으로는 페르미 준위(Fermi level) 근방에서의 에너지 구조가 기존의 다른 물질들과는 달리 선형 에너지 분산 관계를 갖게 되며(그림 1(b)), 이 에너지 관계는 슈뢰딩거 방정식(Schrödinger equation)이 아닌 질량이 없는 입자에 대한 디랙 방정식(Dirac equation)에 의해서 기술이 된다. 또 다른 하나의 주요 물성으로는 격자 낱칸(lattice unit cell)이 구분할 수 없는 두 개의 탄소 원자로 이루어져 있어 그래핀의 전자 구조에 대한 방정식이 격자 낱칸 내에 축퇴되어 있는 A, B 두 개의 탄소 원자에 대한 파동함수에 의해 기술되기에 또 다른 유사스핀(pseudo-spin)의 성질을 갖게 된다. 이로써 전자 자체에서 기인한 $+1/2$ 와 $-1/2$ 의 스핀 축퇴와 함께 총 4개의 축퇴된 전자 상태를 가지게 되는데 이를 graphene quartet이라고 부르기도 한다.^[5,6]

이러한 그래핀의 기본적인 중요 전자 구조들은 2000년대 중반 처음으로 발견된 이후 전하 수송 실험(electron transport measurement)에 의해서 많이 밝혀지게 되었다. 하지만 그래핀에 대한 특이 물성을 완벽히 이해하기 위하여, 그리고 나노 크기의 소자(device)로서 이용하고자 할 때에 미시적인 소자의 크기 및 구조 변화에 따른 물성 변화를 예측하기 위해서는, 전하들이 실제로 그래핀 내에서 어떻게 분포되어 있는지에 대한 이해, 특히 나노 크기의 구조 내에서 혹은 강한 자기장 내에서의 전하 간 상호작용을 원자크기의 공간해상도를 가지고 이해할 필요가 강하게 부각되었다. 이미 기술되어진 바와 같이 이에 대한 가장 강력하면서도 유일한 방법이 원자 수준의 실공간해상도(atomic resolution)도 가지고 있는 주사형 터널링 분광학 측정(scanning tunneling spectroscopy, STS)이다.

그래핀 소자에서의 STS

그래핀은 그 제조 및 분리 방법에 따라 흑연 표면에서의 그래핀, 테이프를 이용하여 산화 실리콘(SiO)₂층에 분리된 그래핀, 실리콘 카바이드(SiC) 위에서 열처리로 얻는 에피택시얼(epitaxial) 그래핀, 화학 증착 방법(CVD, chemical vapor deposition)에 의한 그래핀, 그리고 탄소나노튜브의 화학결합을 끊어서 생성하는 그래핀 나노 리본(graphene nano ribbon) 등 여러 가지로 나뉜다. 서로 다른 제조 방법으로 합성된 그래핀은 각기 대용량 합성의 용이성, 불순물 함량 정도 그리고 전자 이동도(mobility) 등의 다양한 차이를 보이고 있으며, 이에 대해 지금까지 많은 주사형 터널링 분광학을 이용한 그래핀의 전자 구조 측정이 이루어졌다. 여기서는 그중에서 가

장 최근에 발표가 되어 관련 분야를 선도하고 있는 두 개의 주제, 뒷문 전압(back gate voltage)을 가지고 있는 산화 실리콘 상에서의 그래핀 연구와 높은 에너지 해상도로 측정된 불순물이 적은 에피택시얼 그래핀의 에너지 구조 측정에 대해서 설명하고자 한다.

그래핀은 이미 그 구조가 암시하고 있듯이 단일 원자층을 갖는 가장 완벽한 2차원 전자 가스(2DEG, 2 dimensional electron gas) 시스템이다. 이에 초창기 대부분의 그래핀 연구는 흑연의 표면에서 스카치 테이프 등을 이용하여 기계적으로 떼어낸 그래핀을 산화 실리콘 위로 분리 및 이동을 시켜 뒷문 전압을 가지고 4탐침 혹은 2탐침 측정 소자를 만들어 이전의 2차원 전자 가스의 전자 구조 측정과 같은 방식으로 전하 수송 측정이 주를 이루어졌다. 반면에 기존 대부분의 전통적 주사형 터널링 현미경/분광학 측정들은 시편(sample) 쪽에 작은 바이아스 전압(bias voltage)을 걸어주고 가상 그라운드(virtual ground)에 해당하는 탐침(tip)쪽으로 흐르는 전류(current)와 전도도(conductance)를 측정하는 2 탐침 측정이다.

최근 버클리 대학팀(U.C. Berkeley)과 미국 표준기술연구소(National Institute of Standards and Technology, NIST)팀에서는 기존 전하 수송 측정에서 이용된 것과 같은 방법으로 제작된 뒷문 전압 조정이 가능한 그래핀 소자를 주사형 터널링 분광학으로 측정하였다.^[7-9] 그림 2의 개략도에서 볼 수 있듯이, 그래핀 소자의 전자 밀도(electron density)를 변화시켜 주면서 전자의 국소 상태 밀도(local density of states)를 에너지와 공간에 대한 해상도를 가지고 측정을 하였다. 주사형 터널링 현미경 측정과 분광학 측정을 동시에 공간적으로 해보면(그림 2(b)) 디랙점(Dirac point)의 에너지 상 위치가 공간적으로 어떻게 변하는지를 알아낼 수 있으며, 이로써 산화 실리콘 상에서의 전하 웅덩이(puddle) 분포와 밴

REFERENCES

- [5] Y. Zhang, Z. Jiang, J. Small, M. Purewal, Y. Tan, M. Fazlollahi, J. Chudow, J. Jaszczak, H. Stormer and P. Kim, Phys. Rev. Lett. **96**, 1 (2006).
- [6] Y. J. Song, A. F. Otte, Y. Kuk, Y. Hu, D. B. Torrance, P. N. First, W. A. de Heer, H. Min, S. Adam, M. D. Stiles, A. H. MacDonald and J. A. Stroscio, Nature **467**, 185 (2010).
- [7] Y. Zhang, V. W. Brar, F. Wang, C. Girit, Y. Yayon, M. Panlasigui, A. Zettl and M. F. Crommie, Nature Phys. **4**, 627 (2008).
- [8] Y. Zhang, V. W. Brar, C. Girit, A. Zettl and M. F. Crommie, Nature Phys. **5**, 722 (2009).
- [9] S. Jung, G. M. Rutter, N. N. Klimov, D. B. Newell, I. Calizo, A. R. Hight-Walker, N. B. Zhitenev and J. A. Stroscio, Nature Phys. Advanced Online Publication (2011).

Fig. 2. (a) Schematic of a scanning tunneling spectroscopic measurement with a back gate measuring a graphene flake placed on SiO_2/Si . Graphene on SiO_2 forms quantum dots by weak disorder potential. The mapping of tunneling current (I) or its conductance by sweeping a bias voltage (V_b) and a gate voltage (V_g) can show a magnetic quantization and quantum dot physics of Dirac fermions in graphene. To analyze quantum dot feature, three different capacitances, drain capacitance (C_D), source capacitance (C_S), and gate capacitance (C_g), should be considered together. (b) A STS tip moving over a graphene flake to measure the spatial variation of disorder potential. (c) Spatial mapping of Dirac point variation induced by local charging impurities. The relative Fermi level based on the Dirac point can be tuned by changing a back gate voltage. (A courtesy of S. Jung in NIST)

드 구조(band structure)가 실제로 공간상 어떻게 분포되는지를 직접적으로 확인할 수 있게 된 것이다. (그림 2(b), (c))

그리고 이때 뒷문 전압 변화에 의해 전자 밀도를 바꾸어 주면서 공간에 따른 국소 전자 상태 밀도를 측정 한 후, 각

측정 에너지별 공간 분포를 푸리에 변환(Fourier transformation)을 통하여 운동량 공간(momentum space)으로 변환하여 분석을 하면 산화 실리콘 위에 얹힌 그래핀 소자에서의 실제 전자들의 산란 구조(scattering)와 그 원인인 전하 불순물의 특성을 파악할 수 있게 되었다.^[7,8]

극저온 고자기장 STM을 이용한 STS

반면 미국 표준기술연구소에서는 버클리 대학팀에서 시도한 뒷문 전압 조정이 가능한 그래핀 소자의 주사형 터널링 분광학 측정에 고 자기장(magnetic field)을 가하여 그래핀 소자의 2차원 전자 가스 시스템의 더욱 풍부한 물리 현상을 측정하여 보고하였다. 이 연구에서는 자기장이 없는 상태에서 디랙점의 분포를 공간적으로 매핑하여 해당 그래핀 소자 내의 전자 웅덩이 구조를 밝힌 후에, 자기장을 점차 체계적으로 양자 홀 영역까지 올려 각 서로 다른 포텐셜 웅덩이에서 전자들의 국소화(localization)를 체계적으로 밝혀내었다. 이 실험에서는 다양한 범위의 자기장을 이용하여, 약한 혼란 포텐셜(weak disorder potential) 시스템에서의 디랙 페르미온(Dirac fermion)인 그래핀 내의 전자에 대하여 란다우 준위(Landau level)라고 불리기도 하는 자성 양자화(magnetic quantization)를 확인하였다. 이와 함께 산화 실리콘 기판으로 인한 약한 혼란 포텐셜의 영향으로 형성된 양자점(quantum dot) 효과로 인한 전자 공명 상태(resonance peak)도 뒷문 전압과 바이아스 전압 공간 상에서 구분하고 그 존재를 규명하게 되었다.^[9] 이에 대한 후속 연구로서 나노 크기의 구조물에 걸쳐진 형태의 그래핀(suspended graphene) 및 질화보론(BN) 판상 위에 옮겨진 그래핀 소자 등에 대한 심도있는 연구가 계속 이어지고 있다.

또한 미국 표준기술연구소에서는 최근에 개발을 완료한 mK 온도 범위에서 동작하는 주사형 터널링 현미경^[10]을 통한 고 에너지 해상도를 갖는 전자 구조 측정도, 높은 전자 이동도를 보여주는 에피택시얼 그래핀에 대하여 최근에 보고가 되었다.^[6] 그래핀의 고유 전하 이동도는 $200,000 \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{sec}$ 에까지 이르기엔 생존 시간(life time)이 매우 짧아 4개의 축퇴된 전자 상태가 매우 얇은 공명 픽으로 겹쳐서 나타나게 된다. 이러한 이유로 혼란 포텐셜(disorder potential)이 큰 산화 실리콘 상의 그래핀 소자의 경우 4 K에서 전하 수송 측

REFERENCES

- [10] Y. J. Song, A. F. Otte, V. Shvarts, Z. Zhao, Y. Kuk, S. R. Blankenship, A. Band, F. M. Hess and J. A. Stroscio, Rev. Sci. Instrum. **81**, 121101 (2010).

Fig. 3. (a) 3 dimensionally rendered STM image of an epitaxial graphene measured at 13 mK. (b) A four graphene quartet states split from $N=1$ Landau level. (c) A schematic view showing energy configuration of a graphene quartet of $N=1$ Landau level. Blue (red)-colored arrows indicate K (K') states, and up/down direction does electron spin direction. In this measurement, g factor for pseudo-spin is about 9 times bigger than that of spin.

정을 했을 때에 4개의 상태를 모두 구분하기 위하여 최고 40 테슬라(40 T)에 이르는 높은 자기장이 필요로 하였다. 하지만

이 연구에서는 10 mK에 가까운 매우 낮은 온도에서 매우 적은 혼란 포텐셜을 갖는 에피택시얼 그래핀에 14 테슬라까지 가하여 그림 3에서와 같이 4개의 graphene quartet을 모두 구분해 내었고, 자기장에 대한 각 전자상태의 간극을 g factor로 환산하여 스핀 분극(Zeeman splitting)과 유사스핀 분극을 구분하였다. 또한 매우 낮은 온도로써 얻게 된 높은 에너지 해상도로 인하여 6개 층을 갖는 에피택시얼 그래핀에서 각 정수 채움 인자(integer filling factor) 사이에 유일하고도 안정적인 $1/2$ 정수의 채움 인자를 갖는 전자 상태를 처음으로 관측하게 되었다. 이는 아직 이론적으로도 예측되지 않았던 새로운 발견이면서, 또한 소자 크기 내에서의 평균화된 값을 보여주는 기존 전하 수송 측정 실험에서는 측정할 수 없는 물리 현상으로, 지속적인 후속 실험과 계산이 이어지고 있다.^[11]

나오는 글

이와 같이 오랫동안 물리학적으로 불안정하여 자연계에 자연스럽게 존재할 수 없다고 여겨진 안정적인 2차원 전자 구조가 그래핀에 의하여 처음으로 실현이 되었고, 그 물리학적 중요성과 함께 산업계에서의 광범위한 응용가능성으로 인하여 많은 서로 다른 분야에서 다양한 각도로 연구가 지속적으로 이루어지고 있으며, 주사형 터널링 현미경만의 중요한 공간해상도의 장점으로 인하여 이 신물질에 대하여 이 기술을 이용한 심도있는 연구의 중요성이 더욱 더 절실하게 부각되고 있다.

REFERENCES

- [11] H. Min, S. Adam, Y. J. Song, J. A. Stroscio, M. D. Stiles and A. H. MacDonald, 1101.2454 (2011).