고체 전자구조 연구

DOI: 10.3938/PhiT.26.004

류한영·이경석·이진호·김창영

Understanding the Electronic Structures of Solids

Hanyoung RYU, Kyoungseok LEE, Jinho LEE and Changyoung KIM

Materials often possess various physical properties, and these physical properties are predominantly determined by the electronic structures of those materials. The goal of our research is to understand the microscopic mechanisms behind novel physical properties by investigating the electronic structures of solids. For that purpose, we use angle-resolved photoemission spectroscopy (ARPES) and scanning tunneling microscopy (STM). Currently, various correlated materials are being investigated by using the above techniques, and the electronic structures are obtained in momentum and real space. The materials under investigation include strong spin-orbit coupling materials, high-temperature superconductors, and transition-metal oxides.

저자약력

류한영은 김창영 교수 연구실 소속 석박사통합과정생으로, 2015년 IBS 연구단 소속 이후 강한 스핀-궤도 결합물질의 전자구조 연구를 전공으로 수학과 있다. (ryuru7@gmail.com)

이경석은 이진호 교수 연구실 소속 석박사통합과정생으로, 2017년 IBS 연구단 소속 이후 주사터널링현미경을 이용한 고온 초전도체 연구를 전공으로 수학하고 있다. (leeksdol@snu.ac.kr)

이진호 교수는 미국 오스틴의 텍사스 대학에서 2002년 고체물리학실험 전공으로 박사 학위를 취득한 이후, 2011년까지 브룩헤이븐 국립 연구소에서 연구원으로 재직 후, 2012년 귀국하여 서울대학교 교수로 현재까지 재직 중이다. 구리 화합물, 철 화합물 등 고온 초전도체의 주사터널링현미경 관련 논문을 써 냈고, 최근에는 초전도체의 원인인 쿠퍼쌍을 실험적으로 최초로 발견한 논문을 게재하였다. (jinholee@snu.ac.kr)

김창영 교수는 스탠퍼드 대학에서 1995년 고체물리학실험 전공으로 박사 학위를 취득하였다. 스탠퍼드 방사광 가속기 연구소 연구원을 거쳐 2001년부터 2015년까지 연세대학교 교수로 재직하였으며, 2015년부터 현재까지 서울대학교 교수로 재직 중이다. 각분해 광전자 분광 장비를 이용한 전자 구조 연구 분야의 전문가로, 2015년부터 기초과학연구원 강상관계 물질 연구단에서 부단장직을 맡고 있다. (changyoung@snu.ac.kr)

들어가는 글

우리 주변의 물질은 다양한 물리적 특성들을 보여주는데, 이 특성들 상당부분은 고체 내의 전자구조에 기인한다. 따라서 다양한 고체의 전자구조를 측정하고 이로부터 물리적 특성의 미세 메커니즘을 이해하려는 연구는 고체물리의 역사와 같이한다. 고체 내의 전자구조 연구에는 광자와 전자를 이용한 다양한 분광 기법이 사용되는데, 본 연구그룹에서는 다양한 결정성장 기술을 바탕으로 각도분해 광전자 분광법(angle-resolved photoemission spectroscopy, ARPES)과 주사 터널링 현미경(scanning tunneling microscope, STM)을 주로 사용하여 연구를 진행하고 있다. 우리는 특히 궤도 각운동량(orbital angular momentum, OAM)에 기인한 전자구조 변화, 2차원 전이금속 칼코젠(chalcogen) 화합물, 고온 초전도 등의 분야에 관심을 갖고 연구를 진행하고 있다.

통상의 고체에서는 반전 대칭성 때문에 OAM이 존재하지 않으나, 최근 고체 표면과 같이 반전 대칭성이 깨진 시스템에서는 OAM이 존재할 수 있고, 여러 가지 물리적 특성에 관련한다는 연구결과가 발표되었다.^[1-3] 본 연구그룹에서는 이를 바탕으로 OAM을 매개로 한 라쉬바(Rashba) 효과의 미시적 원리 및 백금 기반 물질의 촉매 작용 메커니즘을 밝히는 연구를 진행하고 있다.

최근, 전이금속 칼코젠 화합물 MX_2 ($M=Mo, W$; $X=S, Se, Te$)는 그래핀과 같이 2차원 단층 구조를 가질 수 있고, 밴드 갭이 존재하는 동시에 높은 전자 이동도를 가지고 있어서 많은 관심을 끌고 있다. 그 응용분야로는 태양전지(solar cell), 태양광발전(photovoltaic), 밸리트로닉스(valleytronics) 등 매우 다양하다. 이에 우리는 단분자층 MX_2 가 가지는 중요한 특성인

REFERENCES

- [1] J. H. Park, C. H. Kim, J. W. Rhim and J. H. Han, Phys. Rev. B **85**, 195401 (2012).
- [2] S. R. Park *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 046805 (2012).
- [3] B. Y. Kim *et al.*, Phys. Rev. B **88**, 205408 (2013).

거대 여기자 결합에너지(large exciton binding energy)와 밸리 홀 효과(Valley Hall effect) 2가지에 집중하여 연구를 진행하고 있다.

또한, 본 그룹에서는 고체물리학의 전통적인 연구주제인 고온 초전도체에도 관심을 갖고 연구를 진행 중이다. 구리 기반 초전도체는 구리와 산소 이온들로 구성된 팔면체가 규칙적으로 배열된 구조를 갖고 있다. 우리는 구리 기반 초전도체 외에도 이와 비슷한 구조를 갖는 여러 전이 금속 산화물에서 이 팔면체의 배열 방식과 그 전이에 따라 다양한 물리적 현상이 발현될 수 있다는 점을 보이고, 일반적인 단위 구조의 역할에 대한 근본적인 해석을 시도하고자 한다.

최근에 발견된 철 기반 초전도체는 구리 기반 초전도체와 결정구조, 상평형도(phase diagram), 높은 초전도 임계온도 등에서 많은 유사성을 보여 구리 기반 초전도체의 원리를 규명하는 데에 중요한 단서를 줄 것으로 관심을 받고 있다. 우리는 다중 궤도 시스템으로 이루어진 철 기반 초전도체가 갖는 궤도 자유도가 초전도와 밀접한 관계가 있을 것이라 예측되었음을 주목하고, 궤도 자유도의 영향에 따른 전자구조 관측을 중점으로 연구를 진행하고 있다.

초전도 틱을 사용한 주사 조셉슨 터널링 현미경(Scanning Josephson tunneling microscopy, SJTM)은 초전도체 내의 쿠퍼쌍의 공간분포를 관찰할 수 있게 해준다. 본 연구그룹에서는 최근 이를 통해 쿠퍼쌍의 운동량이 BCS 모형이 예측하는 $Q=0$ 이 아니라 어떤 특정한 값을 갖고 있음을 보였다. 고온 초전도체들이 보통 갖고 있는 유사갭(pseudo gap) 상의 초전도 상과의 관련성에 대해서도 SJTM을 이용해 규명하려는 연구를 진행하고 있다.

궤도 각운동량

기존 라쉬바 효과는 반전 대칭성이 깨져있는 고체 표면에 이차원적으로 국한되어 있는 전자들의 움직임에 의한 유효 자기장과 전자의 스핀 각운동량의 상호작용으로 설명되어 왔다. 하지만 이러한 설명에는 몇 가지 문제가 존재한다. 가장 두드러진 문제는, 전자의 스핀 궤도 각운동량을 기반으로 한 유효 해밀토니언이 예측하는 갈라짐 에너지와 실험적으로 관측되는 갈라짐 에너지가 약 10만 배 차이가 나는 것이다. 또한, 기존의 설명은 원자 번호와 갈라짐 에너지 크기가 비례하는 경향을 보임을 설명하지 못한다.

최근 본 연구그룹은 고체 표면에서 살아남은 궤도 각운동량에 의한 비대칭적 전자 분포와 반전 대칭성 깨짐으로 인한 전기장의 상호작용을 통해 에너지 갈라짐 현상이 일어날 수 있고, 이러한 전기적 에너지가 라쉬바 효과의 미시적인 설명이

Fig. 1. From the left, Fermi surface maps of right-, and left-circularly polarized light, circular dichroism signal from SrTiO_3 and the chiral OAM structure based on the data.

될 수 있음을 보고하였다.^[3,4] 라쉬바 효과에 의한 에너지 갈라짐을 보이는 대표적인 예는 금의 (111) 표면 ($\text{Au}(111)$)의 표면 상태 전자구조이다. 이 $\text{Au}(111)$ 표면 상태가 가지는 궤도 각운동량과 그 구조는 원형 편광 ARPES(circular dichroism angle-resolved photoemission)를 통해 관측되었다. 궤도 각운동량을 통한 $\text{Au}(111)$ 에서의 라쉬바 에너지 갈라짐 해석은 기존의 스핀을 통한 해석보다 갈라짐 에너지 크기를 더 잘 설명한다. 또한, SrTiO_3 의 (001) 방향 표면구조에서 기존에 알려진 d_{xy} 궤도뿐만 아니라 $d_{xz/yz}$ 궤도에서도 버금밴드(subband)가 존재함을 관측하고 OAM 구조를 해석하였다(그림 1). 이러한 결과는 표면 밴드의 갈라짐이 궤도 각운동량을 바탕으로 한 라쉬바 효과로 이해될 수 있는 단서를 제공한다.^[5]

연료전지 음극의 백금 기반 촉매는 표면에 흡착된 산소 기체를 분해하여 산소 원자로 만드는 반응을 일으킨다. 촉매 반응은 물질의 표면에서 일어나는 반응으로, 촉매 물질의 표면 전자 특성은 반응성과 밀접한 관련이 있다. 최근 연구에 따르면 촉매 물질의 반응 메커니즘에 있어 표면의 전기 쌍극자의 크기가 촉매 반응 중 크게 바뀌며, 반응성에 큰 영향을 미친다는 것이 알려졌다.^[6] 본 연구그룹에서는 촉매 물질 표면의 궤도 각운동량에 의한 비대칭적 전자 분포가 전기 쌍극자와 같은 역할을 하며 촉매 반응성에 영향을 줄 것으로 기대하고 있다. 이를 규명하기 위하여 원형 편광 ARPES를 통해 Pt, Pt-Ni 합금, Pt-Co 합금 물질의 전자 구조와 각운동량의 크기를 측정하였으며, 결과를 분석하고 설명하기 위한 이론을 정비하고 있다. 또한, 백금 물질의 촉매 반응 중 각운동량의 변화를 관찰하기 위하여 백금 표면에 산소 원자를 흡착시킨 상태에서 원

REFERENCES

- [4] B. Y. Kim *et al.*, Phys. Rev. B **85**, 195402 (2012).
- [5] S. Soltani *et al.*, Accepted on Phys. Rev. B.
- [6] Jun Hee Lee *et al.*, Phys. Rev. Lett. **122**, 196102 (2014).

Fig. 2. Schematic band structures of a semiconductor and the exciton formation process.

형 편광 ARPES를 진행 중이다. 이를 통해 백금의 산소 분해 촉매 반응에 실질적으로 관여하는 밴드를 규명하고 이 밴드의 궤도 각운동량 변화로부터 촉매 메커니즘을 규명할 수 있을 것으로 기대한다.

고체 내부의 OAM을 이용하여 설명할 수 있는 또 다른 물리 현상으로는 스핀홀효과(Spin Hall effect)를 들 수 있다. 스핀 홀효과는 스핀트로닉스 등의 응용분야에 필수적인 역할로 인해 많은 연구가 이루어지고 있지만 아직 정확한 원리가 규명되지 않은 상태이다. 이러한 스핀홀효과를 고체 양단의 전압차에 의한 반전 대칭성 깨짐과 그로 인한 반대 방향의 OAM을 갖는 밴드의 갈라짐으로 이해할 수 있다는 연구가 진행되고 있다.^[7]

이차원 물질

현재 태양전지 등에 상용되고 있는 반도체 물질 중 하나인 실리콘의 경우 여기자결합에너지는 수 마이크로 전자볼트(eV)로 그 값이 매우 작다. 반면 단분자층 MX₂의 경우 그 크기가 수백 밀리 전자볼트로 실리콘에 비해 그 값이 매우 크며, 그 원인은 차원이 줄어들면서 가리기 효과가 커졌기 때문으로 알려져 있다.^[8] 덩어리 시료 위, 아래층 사이의 약한 상호작용으로 인해 가리기 효과가 작아져 여기자결합에너지가 약해지기 때문이다.^[9] 본 연구그룹에서는 MX₂보다 더 작은 층간의 상호작용을 가진 2차원계 물질이라면 덩어리 시료에서도 가리기 효과가 충분히 커서 여기자결합에너지가 클 수도 있을 것으로 예상하고, 기존의 MX₂ 물질이 아닌 ReS₂에 대해 그 가능성을 연구하고 있다. ReS₂의 경우 MX₂보다 층간의 상호작용이 작아서 덩어리임에도 MX₂의 단분자층과 몇 가지 유사한 물성을 가지고 있다.^[10] 따라서 ReS₂가 큰 여기자결합에너지를 가지고 있을 것으로 기대하며 지속적으로 연구를 수행해 나가고 있다.

단분자층 MX₂는 구조적으로 반전대칭성이 깨진 물질로 그림 3에서 보이는 것과 같이 두 개의 서로 다른 밸리가 존재하게

Fig. 3. Schematic band structure of monolayer and bulk MX₂.

된다. 여기서 밸리는 그림에서 육각형 브릴루앙 영역의 꼭짓점에 위치한 K점에서 가지는 MX₂의 홀형 밴드를 의미한다. 각각의 밸리는 K, -K 밸리로 구분 지을 수 있으며 K 또는 -K 밸리에 있는 전자들은 서로 반대 방향의 밸리 유사 스핀을 가지고 있다.^[11] 밸리가 가지는 유사 스핀은 밸리트로닉스의 응용 가능성이 있으며, 차세대 디바이스 제작의 가능성이 있다.

단분자층 밸리가 유사 스핀을 가지는 현상의 원인에 대한 연구를 위해 원형 편광 ARPES 실험을 진행하였다. 원형 이색성 데이터는 고체 안에 있는 전자들의 위상을 측정할 수 있는 것으로 알려져 있다.^[12] 반전대칭이 깨져있는 물질의 경우 특정 운동 공간에 있는 전자들 사이에서 서로 다른 위상을 가질 수 있고 이것은 베리곡률(Berry's curvature)로 표현될 수 있다. ARPES를 통해 이 베리곡률을 측정하기 위해서는 원형 편광된 빛을 이용하여 얻은 원형 이색성 데이터로 가능함을 제시하였다.

이러한 연구를 기반으로 반전대칭성이 깨져있는 MX₂에 대해 원형 이색성 데이터를 얻음과 동시에 밀접결합(tight-binding) 계산 방식을 통해 운동량 공간에서 가지는 베리곡률을 계산하고 두 개의 결과를 비교하였다. 그 결과 반전대칭성이 깨짐으로 구분되는 K, -K 밸리의 전자들은 서로 다른 베리곡률을 가지고 있으며 밀접결합 계산 방식으로 예측된 베리곡률과 원형 이색성의 결과가 서로 잘 일치함을 관측하였다. 운동량 공간에서 베리곡률을 실험적으로 얻어 향후 밸리홀효과 연구에 중요한 단서를 제시할 수 있을 것으로 기대된다.

베리곡률은 반전대칭성과 같은 대칭성과 연관된 물리량으로

REFERENCES

- [7] W. S. Jung *et al.*, arXiv:1407.3446v1.
- [8] M. M. Ugeda *et al.*, Nature Mater. **13**, 1091 (2014).
- [9] D. Y. Qiu *et al.*, Phys. Rev. B **93**, 235435 (2016).
- [10] S. Tonga *et al.*, Nature Commu. **5**, 3252 (2014).
- [11] J. M. Riley *et al.*, Nature Phys. **10**, 835 (2014).
- [12] Y. Liu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **107**, 166803 (2011).

Fig. 4. (a) Crystal structure of Sr_2RuO_4 with corner sharing octahedra. (b) Unrotated octahedral structure. The black line denotes the unit cell in the layer. (c) Rotated octahedral structure and corresponding doubled unit cell.

그 기원이 OAM과 닮아있다. 앞서 OAM팀의 개념과 같이 베리곡률 역시 원형 이색성 데이터로 측정이 가능하기 때문에 기존의 이차원 물질 팀에서 얻은 결과와 잘 일치한다. 현재 밀접결합 계산으로 그 가능성을 예측하고 있으며, 어떤 특정한 상황에서 베리곡률과 OAM이 서로 얽혀있어 OAM 또는 스핀을 바꾸므로 인해 베리곡률을 통제할 수 있을지 연구할 계획을 가지고 있다.

산화물

그림 4(a)에 보이는 바와 같이 본 연구그룹에서 특히 관심을 가지고 있는 구조는 전이 금속 산화물 팔면체가 층상 구조를 이루고 있는 물질이다. 이와 같은 구조는 앞서 언급한 구리 기반 초전도체에서 흔히 보이는 형태로 많은 주목을 받았다. 이러한 물질의 특이성은 그림 4(b)와 (c)의 차이를 통해 유추할 수 있다. 각각은 팔면체의 한 층을 위에서 바라본 그림이며, (c)의 경우 (b)와 비교하여 팔면체들이 회전해있음을 알 수 있다. 이로 인하여 검은 선으로 표시된 각각의 단위격자 크기를 살펴보면 그 크기가 2배 차이가 나는 것을 알 수 있다. 팔면체의 회전이라는 단순한 변화가 단위격자 크기 자체를 바꾸는 큰 효과를 동반하는 것이다. 실 공간상에서 단위격자의 크기가 2배 늘어나면 역공간의 단위격자 브릴루앙 영역은 절반으로 줄어들게 된다. 따라서 전자 구조는 줄어든 브릴루앙 영역에 맞춰 밴드를 복사하게 되며, 이로 인하여 접하게 된 두 밴드가 존재할 경우 전자 에너지를 낮추기 위해 두 밴드가 합성되어

Fig. 5. Fermi surface maps from the cleaved surface (a) and K-dosed surface (b). Bands are distinguished by Greek letters, and superscripts b, s, sf stand for bulk, surface, surface folding, respectively.

간격(gap)을 형성할 수 있다. 결과적으로 전자의 총 에너지가 낮아져, 구조 전이로 인해 새로운 전자 구조가 만들어질 수 있다.^[13,14]

본 연구그룹은 전자 구조의 변화를 분석, 응용하기 위하여 다양한 방법으로 구조 전이를 유도하고자 한다. 그 중 하나로, 특정 물질의 팔면체 구조는 전자기장을 조절함으로써 회전을 조절할 수 있다. 일반적으로 물질의 표면에는 전자기장이 존재한다. 이로 인하여 표면의 구조는 종종 물질 내부와는 다른 구조를 형성한다. 본 연구그룹은 알칼리 금속 원자를 표면에 증착시킴으로써 가리기(screening) 효과로 인한 전자기장 조절이 가능하다는 것을 발견하였다.^[15]

Sr_2RuO_4 물질은 위와 같은 현상으로 인하여 팔면체 회전의 전이가 일어난다. Sr_2RuO_4 는 일반적으로 표면에서만 팔면체의 회전이 관측되는 특수한 물질이다. 각분해 광전자 분광 실험을 통해 전자 구조를 관측하면 그림 5(a)와 같이 표면과 내부의 구조 차이로 인해 복잡한 전자 구조를 형성하는 것을 알 수 있다. 하지만 알칼리 금속인 포타슘(K)을 2층 증착시킨 결과, 그림 5(b)와 같이 표면의 전자 구조가 사라지는 것을 관측할 수 있었다. 이와 같은 현상이 표면의 팔면체 회전이 사라져 내부와 같은 구조를 띠게 되었기 때문이며, 전자기장이 팔면체의

REFERENCES

- [13] B. J. Kim *et al.*, Phys. Rev. Lett. **97**, 106401 (2006).
- [14] Eunjung Ko *et al.*, Phys. Rev. Lett. **98**, 226401 (2007).
- [15] Wonshik Kyung *et al.*, in progress.

Fig. 6. Phase diagram of $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$, displaying orbital order fluctuation.

회전을 야기하는 중요한 요인이라는 것을 발견할 수 있었다.

둘째로, 전자의 도핑을 통해 구조 변이를 야기할 수 있을 것이라 추측하고 있다. 앞서 설명했듯이 구조의 전이는 브릴루앙 영역의 감소를 일으켜 이로 인해 접하게 된 두 개의 밴드가 합성하여 간격을 형성하게 함으로써 전자 에너지를 낮출 수 있다. 따라서 팔면체의 회전이 없는 특정 물질에서도 도핑을 통해 전자 구조를 변형시킴으로써 팔면체의 회전을 위와 같은 방식으로 이끌어낼 수 있다고 생각한다. 현재 다양한 시료를 도핑별로 제작, 각분해 광전자 분광 실험을 진행 중에 있다.

이와 같은 팔면체 구조의 특성 연구는 다양한 분야에서 동시 다발적으로 진행되고 있다. 팔면체 구조가 단결정 물질의 기본 구성단위인 이상 고체 물리학 분야의 다양한 특성을 연구하는 데에 중요한 요소가 되는 것이 당연하다. 예를 들어 과거 연구된 얀-텔러(Jahn-Teller) 효과는 팔면체 물질의 전이 금속 산소 거리에 따라 전자 구조가 변할 수 있으며 역도 참일 수 있다는 점을 시사하는 중요한 발견으로 많은 연구자들이 이 개념을 차용하여 물리적 현상들을 설명하려 하고 있다.^[16] 본 연구그룹은 더 나아가 팔면체의 회전 또한 전자 구조에 중요한 변이를 야기할 수 있다는 점을 시사하여 특성 연구에 도움이 되고자 한다.

초전도 현상

앞서 언급한 바와 같이, 철기반 고온 초전도에서는 궤도 자유도가 중요한 역할을 할 수 있다고 믿어지고 있다. 이에 궤도 자유도와 초전도와의 관계성을 밝혀내기 위해 철기반 초전도체의 한 시스템인 BaFe_2As_2 에 대해 도핑 물질별로 X선 선형 이색성(X-ray Linear Dichroism or XLD) 실험을 수행하였다.

Fig. 7. T_c enhancement with pure electron doping with alkali metal dosing and Fermi surface topology change plotted on the phase diagram of $\text{Ba}(\text{Fe},\text{Co})_2\text{As}_2$.

XLD 실험은 수직과 평행으로 선형 편광된 두 빛을 샘플에 수직으로 입사시켜 d_{xz} , d_{yz} 궤도의 전자 점유도를 직접적으로 알 수 있다. 이를 통하여 BaFe_2As_2 시스템에 대해 d_{xz} , d_{yz} 궤도 간의 점유도 차이가 있는 궤도 정렬(Ferro orbital order) 그리고 궤도 요동(orbital order fluctuation)의 위상 다이어그램(그림 6)을 완성하였고 초전도 상과의 밀접한 관계성을 밝혀냈다.^[17]

초전도 상은 궤도 정렬뿐만 아니라 자성과의 연관성이 있기 때문에 궤도 정렬과 초전도 상과의 관계를 더 명확히 규명하기 위해서는 자성이 없는 시스템에 대한 연구가 필요하다. 이를 위해 자성을 가지고 있지 않은 철기반 초전도체인 FeSe 에 대해 궤도 자유도에 대한 연구를 진행하고 있다. 현재까지의 연구를 통해 FeSe 에 d_{xz} , d_{yz} 궤도의 전자 점유도 차이가 BaFe_2As_2 와 다른 경향의 궤도 정렬을 가지고 있음을 발견하였다. XLD 실험에서 뿐만 아니라 ARPES 실험에서도 지금까지 알려진 철기반 초전도체의 전자구조와 다른 경향을 보이는 것을 확인하였다.

궤도 자유도의 관측뿐만 아니라 변화를 통한 물리적 특성을 관측하기 위해 표면 전자 도핑 기술을 사용하였다. BaFe_2As_2 에 표면 전자 도핑을 하였을 때 초전도 임계온도에는 변화가 없었지만 궤도 정렬 온도와 자성전이 온도의 다른 경향성을 보이는 것을 관측하였다. 이는 궤도 정렬과 자성의 원인이 다

REFERENCES

- [16] A. J. Millis, Phys. Rev. Lett. **77**, 175 (1996).
- [17] Y. K. Kim *et al.*, Phys. Rev. Lett. **111**, 217001 (2013).

Fig. 8. Schematic drawing of the SNU SI-STM Laboratory.

를 수 있다는 가능성을 제시하며 더불어 초전도 임계온도와 어느 것이 더 직접적인 요인이 될 것인지 밝혀줄 것으로 기대하고 있다.

그 외에도 표면 전자 도핑을 통하여 초전도 임계 온도의 변화를 측정하였다. Co 도핑된 BaFe_2As_2 에 표면 전자도핑을 하였을 때 초전도 임계온도가 24 K에서 41 K까지 상승하는 것을 관측하였다.^[18] BaFe_2As_2 초전도체는 전자 포켓과 홀 포켓의 크기와 모양이 비슷한 페르미면을 가지기 때문에 생기는 페르미면 겹짜기 불안정(Fermi surface nesting instability)이 초전도 임계온도 상승의 원인이라 생각되어 왔다. 하지만 이 연구에서 표면 전자 도핑으로부터 겹짜기 불안정성이 약해지는 것을 관측하였다. 이는 겹짜기 불안정성이 초전도 임계온도 상승의 직접적인 원인이 아니라는 것을 밝혀주었다.

최근 발견된 단분자층 FeSe/STO 의 100 K 초전도 임계온도 상승의 원인으로 표면효과와 추가적인 전자도핑 등이 제안되었다. 이를 직접 확인해보기 위해 FeSe 에 표면 전자도핑을 하였으며 초전도 임계온도가 20 K까지 상승하는 것을 관측하였다.^[19] 이 연구 결과에서 단순 전자 도핑으로는 초전도 임계온도가 100 K까지 상승하지 못하는 것을 의미하며 표면효과가 초전도 임계온도를 상승시키는 주 요인이라는 것을 직접적으로 밝혔다.

현재까지 진행된 연구를 통해 궤도 자유도가 초전도뿐만 아니라 철기반 초전도체에서 보이는 여러 위상들에 영향을 미치는 것을 확인할 수 있었다. 궤도 자유도가 미치는 영향을 더 정확하게 알기 위해서는 궤도들의 전자 점유도와 궤도간의 혼합에 대한 연구가 필요하다. 이를 위해서 시스템 및 도핑 물질 별로 전자구조를 통한 궤도 자유도의 연구를 진행할 예정이다. 이를 통해 철기반 초전도체의 초전도 및 여러 위상들이 생기는 중요한 단서를 얻어 그간 숨겨져 있던 철기반 초전도체와 구리 기반 초전도 현상 이해에 중요한 역할을 할 것이라 기대한다.

Fig. 9. The result of the direct observation of the Cooper pair density.

주사 터널링 현미경

초전도체를 구성하는 쿠퍼쌍은 BCS 모형에 의하면 총운동량이 $0(Q=0)$ 이라고 널리 알려져 있다. 하지만 Fulde-Ferrel-Larkin-Ovchinnikov(FFLO)^[20,21] 상을 비롯한 많은 이론들이 쿠퍼쌍의 총운동량(Q)이 0이 아닌 값을 가지는 짝 밀도파동(pair density wave)을 제안하였다.^[22,23] 이 짝 밀도파동을 STM을 이용하여 관측하기 위해서는 아원자 분해능이 필수적이다. 기존의 STM 실험 방식은 페르미 준위에 존재하는 쿠퍼쌍들을 깨뜨려 보골리우보프(Bogoliubov) 준입자로 만든 후 이들의 터널링 전류를 측정하는 것인데, 이는 쿠퍼쌍들에 대한 간접적인 정보를 제공한다. 하지만 이러한 기존의 방식으로는 쿠퍼쌍 밀도를 직접 측정할 수 없기에 한계가 분명히 존재한다.

최근, 짝 밀도파동을 측정하기 위해서 조셉슨 효과를 이용한 새로운 STM 실험 기법이 시도되었다. 조셉슨 효과는 약하게 연결된 두 초전도체 접합에서 쿠퍼쌍이 깨지지 않은 채로 터

REFERENCES

- [18] W. S. Kyung *et al.*, Nat. Mater. **15**, 1233 (2016).
- [19] J. J. Seo *et al.*, Nat. Commun. **7**, 11116 (2016).
- [20] P. Fulde and R. A. Ferrell, Phys. Rev. **135**, A550 (1964).
- [21] A. I. Larkin and Y. N. Ovchinnikov, Soviet Physics JETP-USSR, **20**, 762 (1965).
- [22] E. Fradkin, S. A. Kivelson and J. M. Tranquada, Rev. Mod. Phys. **87**, 457 (2015).
- [23] A. Himeda, T. Kato and M. Ogata, Phys. Rev. Lett. **88**, 117001 (2002).

널링하는 현상을 말하는데, STM과 조셉슨 효과를 결합한다면 STM의 훌륭한 공간 분해능을 이용해 쿠퍼쌍 밀도의 공간적 분포를 측정할 수 있다. SJTM은 기존에 시도된 바가 있으나,^[24-26] 쿠퍼쌍 밀도의 공간 분포를 원자 단위의 분해능으로 측정한 결과는 보고된 바가 없었다.

SJTM 실험을 수행하는 데에 가장 중요한 요소는 초전도 팁으로, 이를 만들기 위해 다음과 같은 방법을 쓴다. 텅스텐 팁을 초전도 샘플에 접근시켜 샘플에서 떨어져 나온 나노미터 크기의 초전도 조각을 팁에 붙이는 것이다. 이를 통한 실험 환경은 그림 9(a)에 그림으로 나타나 있다. 초전도 팁을 샘플에 충분히 가깝게 가져가면 초전도 팁과 샘플 사이의 약한 결합을 가진 접합을 만들어낼 수 있다. 조셉슨 효과로 인해 쿠퍼쌍 터널링 전류가 흐르게 되면 그림 9(b)의 전류-전압 곡선과 같이 0 바이어스 근처에서 특징적인 형태가 나타나며, 이를 통해 조셉슨 효과가 일어남을 확인할 수 있다. 0 바이어스 근처에서 전류의 최대값은 조셉슨 접합의 임계전류에 해당한다. 따라서 팁을 움직여 각각의 위치에서 전류-전압 곡선 및 dI/dV 의 측정을 하면 조셉슨 접합의 임계전류, 즉 쿠퍼쌍 밀도를 알아낼 수 있다.

이러한 기술을 바탕으로 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8-x}$ (Bi-2212) 고온 초전도체에서 최초로 SJTM 실험에 성공하였다. 그림 9(c)는 $35\text{ nm} \times 35\text{ nm}$ 크기로 측정한 조셉슨 임계전류 맵을 보여주는 데, 물결무늬가 주기적으로 반복되는 형태를 발견할 수 있다. 또한, 이 맵을 푸리에 변환한 그림 9(d)에서 해당하는 q -벡터(빨간 색 원으로 표시)를 명확하게 확인할 수 있다. 이는 쿠퍼쌍 밀도가 0이 아닌 총운동량 Q 를 가짐을 최초로 발견한 것으로 그 동안 이론적으로만 제안되어 왔던 짝 밀도파동을 실험적으로 처음 발견한 것이다. FFLO를 포함하여 많은 이론들이 짝 밀도파동을 제시해왔으나 실험적으로 관측된 바가 없어 제시된 이론들에 대한 추가적인 연구가 어려웠으나 이번 발견을 통하여 고온 초전도체에 대한 연구에 박차를 가할 수 있을 것으로 기대된다.

SJTM을 활용한 연구 중 가장 흥미로운 것으로 기대되는 연구는 유사겟 상에서의 실험이다. 오랜 기간 동안 수많은 실험 및 이론 연구진들이 유사겟에 대해 연구해왔지만 아직도 이 유사겟 상이 초전도 상과 어떤 연관이 있는지 명확히 밝혀내지 못하였다. 유사겟 상에서 온도를 낮춰 가면 초전도체로 위

상이 변화하기 때문에 유사겟 상은 초전도 현상과 상호 보완적 혹은 상호 배타적인 관계를 가질 것으로 예상되고 있다. 만약 유사겟 상이 초전도 현상과 상호 보완적이라면 유사겟 상에서 쿠퍼쌍이 미리 형성이 되어있는데, 단지 전역적 결맞음(global coherence)의 부재로 초전도가 되지 않는 것이라 볼 수 있다. 이러한 문제를 밝히는 데 있어 SJTM은 큰 역할을 수행할 수 있다. 본 연구그룹은 SJTM을 이용해 유사겟 상에서의 쿠퍼쌍의 존재 여부를 확인하려고 노력 중이다. 또한, 측정하려는 샘플에 온도 변화 및 자기장을 가해 쿠퍼쌍들이 공간상에서 어떤 상호작용을 하고 변화하는지를 명확하게 보이려고 한다. 이런 실험을 구리 산화물에만 제한하지 않고 닉타이드(nitride) 계열의 초전도체 등에도 확장하려고 한다. 이런 연구를 진행함으로써 SJTM이 초전도체 전반에 대한 메커니즘 규명에 한 걸음 더 다가갈 수 있을 것이다.

맺는 말

1990년대 이후 ARPES 및 STM은 고체의 전자구조를 이해하기 위한 가장 중요한 실험 방법으로 널리 받아들여지고 있다. 본 연구그룹은 기존 고체물리에서 중요하게 여겨지지 않던 궤도 각운동량이 반전 대칭성이 깨진 계에서 물리적 특성에 미치는 영향을 밝혀내었으며, 이를 통해 기존의 이론으로는 설명되지 않던 물리적 현상들을 규명하는 데에 큰 기여를 하고 있다. 또한 궤도 자유도, 유사겟 상과 초전도 현상의 상호작용에 관한 연구를 통하여 초전도 현상에 대한 이해도를 한층 높였다. 그리고 최근 각광받는 그래핀 유사 물질의 대칭성 변화로 인해 생기는 특이한 물성들에 대한 연구를 진행하고 있다. 이러한 전자구조 연구를 통한 각종 물리적 현상들에 대한 미시적 메커니즘을 규명하는 데에 기여함으로써, 이들 현상에 대한 물리적 이해를 넓히는 것뿐만 아니라 이를 이용한 응용성을 확장하는 데에도 큰 도움을 줄 것이라 기대된다.

REFERENCES

- [24] O. Naaman, W. Teizer and R. C. Dynes, Phys. Rev. Lett. **87**, 097004 (2001).
- [25] J. G. Rodrigo, H. Suderow and S. Vieira, European Physical Journal B **40**, 483 (2004).
- [26] T. Proslir *et al.*, Europhysics Letters **73**, 962 (2006).