시간반전 대칭성, 시간의존적 밀도범함수, 양자역학의 슬픔

DOI: 10.3938/PhiT.27.027

박 노 정

Breaking the Time-Reversal Symmetry with a Rotating Phonon and the Calculation with Time-Dependent Density Functional Theory

Noejung PARK

In everyday life we experience various phases of materials and often benefit from technological tailoring of them with specific mechanical, optical, electronic, or magnetic qualities. Microscopically, these materials consist of electrons and nuclei, and their properties can mostly be attributed to the quantum mechanical arrangement of their electrons. While the inner structure of the nucleus plays negligible role in determining the properties of the material, the mass or the vibrations of the nucleus are clearly manifested in the material's characteristics. We were motivated by the question whether a particularly rotating pattern of the nucleus can perturb the time-reversal symmetry of a solid system. Compared with the widely accepted notions about the quality of circularly polarized photon, that of phonons is still not clearly understood. We show that, for MoS₂ and other transition metal dichalcogenide (TMDC) as example materials, the spin structure can be changed by the presence of phonons and that even a net spin moment emerges when phonons coherently rotate with a particular polarity.

들어가며

벚꽃망울이 채 불거지기도 전인 이른 봄날의 토요일이었다. 오랜 친구이자 좋은 선배이기도 한 김철민 선생이 점심을 사준다고 하여 나갔더니, 본지 '물리학과 첨단기술'(아래에서 '물침'으로 축약함)의 편집을 맡고 계시다면서, 지난번에 Nature

Communications에 발표한 우리의 논문(신동빈, Nat. Comm. **9**, 638 (2018))을 대중 및 인접분야 과학자들에게 소개하는 한 페이지의 글을 써 달라고 했다. 이전에 '물침'에서 원고청탁을 받았을 때, 이러 저런 핑계를 대다가 전화기 꺼놓고, 시쳇말로, 잠수 타버린 적이 있었다. 그분들에게 미안한 마음도 있었던 터라 이번에는 어떻게든 써보겠다고 했지만, 실상은 내키지 않았다. 대중에게는 말할 것도 없고, 인접 과학자들에게조차 아름다운 나눔이 될 만한 좋은 글을 쓰는 것에 자신이 없었기 때문이다. 좋은 실적을 내거나 있어 보이는 어려운 말을 해가며 남들 앞에서 자랑해보고 싶은 마음이 공부를 하게 하는 동력이 되기도 했던 것 같다. 이제 그런 것이 웬만큼 사라진 입장이 되다보니, 보잘 것 없고 부끄럽지만, 이 생태계와 이 사회에(혹은 학생들이나 가까이 있는 몇몇 지인들에게) 무슨 도움이 되는 사람이거나 한 건가 하는 자문(自問)이 문득 이는 것을 피할 길이 없다. 이만한 직장에서 이 정도 월급을 받는 사람으로서, 게다가 여러 연구과제에서 국가의 연구비를 받아 온 사람으로서, 작은 노력들이나마 해왔다는 변명이라도 되는 글이길 바라본다.

DFT and TDDFT

우리 전문 분야를 지칭하는 이름이 고체물리 분야 중에서도 '전자구조이론'이라고 부르는 경우가 많이 있다. 풀어서 말하자면 전자의 양자역학적 구조를 연구한다는 것인데, 쉽게 말해서 전자의 숫자가 많은 경우의 Schrödinger 방정식을 풀어내기 위한 각종 이론체계이며, 전자계에 영향을 주는 원자진동(포논, phonon) 또는 외부 전자기파(광양자, photon)의 영향을 포괄해야 하는 분야이다. 이들 이론체계들 중에서 가장 흔히 사용되는 방법 중에 밀도범함수론(density functional theory)이란 것이 있는데, 그것을 구현하는 방정식은 양자역학 교과서에 나오는 시간독립적 슈뢰딩거 방정식(time-independent Schrödinger equation)과 거의 같다. 다만 여러 전자들의 영향을 기술하는 항을 포함해야 해서, 그 이름을 특별히 Kohn-Sham 방정식이라고 부르며, 아래와 같이 생겼다.

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V_{ext}(\vec{r}) + \int \frac{\rho(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d^3\vec{r}' + \nu_{xc}(\vec{r}) \right] \psi_n(\vec{r}) = E_n \psi_n(\vec{r})$$

저자약력

박노정 교수는 서울대학교 토목공학과를 졸업하고(공학사, 1994), 동 대학 물리학과에서 이학박사 학위(2002)를 취득한 후 단국대학교 응용물리학과 교수(2005-2011)를 거쳐 2011년부터 울산과학기술원 에너지공학부 교수로 재직하고 있다.(noejung@unist.ac.kr)

Fig. 1. Schematic illustration of the geometry and the structure of an optical E' phonon. The motion of the spin vector ($\vec{S}(t)$) in response to the phonon is displaced on the Bloch sphere in time range $0 \leq t \leq 250$.

2013년에 신동빈 군이 대학원에 입학할 때, “무엇을 가르쳐 볼까? 박사학위 연구주제가 될 만한 게 무엇이 있을까?”를 고민하다 생각해 낸 것이 시간의존적 밀도범함수론(time-dependent density-functional theory, TDDFT)을 다룰 수 있는 계산법과 관련 컴퓨터 프로그램을 만드는 것이었다. 독자들께서 양자역학 교과서에 나오는 time-dependent Schrödinger equation을 상상한다면 거의 정확한 것이다. 이 업계의 전문용어로는 time-dependent Kohn-Sham equation이라고 부르며 다음과 같이 생겼다고 할 수 있다.

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi_{n,k}(\vec{r})\rangle = \left[\frac{1}{2m} (-i\hbar \vec{\nabla} + \frac{e}{c} \vec{A}_{ext})^2 + \sum_{\lambda} \nu(\vec{r} - \vec{R}_{\lambda}(t)) + V_{Hxc}[\rho(\vec{r})] + \hat{\nu}_{SOC} + \hat{\nu}_U \right] |\psi_{n,k}(\vec{r})\rangle.$$

보다 자세히 얘기하자면, 이러한 실시간-실공간의 TDDFT를 다루는 계산법은 몇몇 연구팀에 의해서 개발되어 사용되고 있었으며, 우리가 세계 최초로 시도를 한 것은 전자-전자 강상관 관계항을 이 계산 체계 내에 도입하는 것이었다. 이제 신동빈 군이 박사학위를 받을 때가 되어 가지만, 오랜 시간 참고 지루한 노력을 이어준 것에 대해서 고마움이 크다.

시간반전대칭성

고전역학 또는 양자역학의 동역학 체계에서 대칭성(symmetry)을 이해하는 것이 매우 중요하다. 관측하고자 하는 계의 대칭성을 이해한다는 것은 그 계의 운동상수(constant of motion)를 이해한다는 것이며 대상계가 불확정하지 않게 특정될 수 있는 상태들에 대해서 이해를 한다는 것이 된다. 가장 쉽고 직관적으로 설명한 예가 회전 대칭성이다. 지구가 태양 주위를 돌 때, 혹은 수소원자에서 전자가 양성자 주변에 있을 때, 우리의 동역학의 대상(여기서는 지구와 전자가 되겠다)은 그것을 태양 또는 양성자를 중심으로 적당히 돌려놓아도 차이를 느끼지 못하는 것이다. 이런 상황이 주는 아름다운 결과는 그 대상 계

의 각운동량이 보존된다는 것이며, 그로 인해 대상 계의 상태를 그것이 가지는 각운동량 값으로 이름 지어 부를 수 있게 된다. 전술한 회전대칭성뿐만 아니라, 물리학자들은 여러 대칭성에 관심이 있는데, 병진대칭성(translational symmetry), 거울 대칭성(mirror symmetry), 점대칭성(inversion symmetry) 등이 그 예들이 되며, 보다 수학적으로 추상화된 것들도 있다.

한편 대칭성들 중에서 가장 요묘한 녀석이 시간반전 대칭성(time-reversal symmetry)이라고 할 수 있다. 야구공을 하늘에 던져 놓고서 비디오카메라로 촬영을 했다고 하자. 그리고 그 비디오를 친구에게 보여주는데, 장난을 쳐 보고 싶은 마음에, 그 비디오를 거꾸로 돌려가며 보여줬다고 해보자. 가만히 생각해 보면, 그 친구가 비디오가 앞으로 돌고 있는지 뒤로 돌고 있는지 알 수가 없다는 사실을 이해하게 된다. 좀 더 일반화하고 개념화하기 위하여 해밀톤 역학(Hamiltonian)의 관습을 빌려 오는 것이 좋겠다. 우리의 동역학 대상 계의 상태는 위치(coordinate)와 운동량(momentum) 값으로 특정될 수 있다. 여기서 coordinate와 그것의 쌍이 되는 momentum은 수학적으로 일반화된 것이며, 선운동량이나 각운동량을 모두 포괄하는 개념이다. 시각 $t=0$ 에서 출발하여 동역학 법칙을 따라서 진행된 계가 시각 $t=T$ 에 왔을 때, 계의 모든 운동량을 반대방향으로 뒤집고 다시 시간 T 만큼 미래로 갔다고 하자. 만약 우리의 대상계가 위의 야구공 같은 시스템이라면, 그것은 이제 “시각 $t=0$ 에서 모든 운동이 뒤집힌 형태”와 같은 상태가 되어 있을 것이다. 이러한 계의 속성을 지칭하여 시간반전 대칭성이 있다고 한다. 양자역학에서는 대상 계의 속성(즉 그것이 가지고 있는 대칭성)을 그 계의 Hamiltonian($\hat{H}$)의 형상으로 표현한다. 즉 대상계가 시간반전 대칭성을 가지면 $\hat{H}\hat{\theta} = \hat{\theta}\hat{H}$ 의 특성을 가져야 하는데 여기서 $\hat{\theta}$ 는 위에서 언급한 ‘계의 모든 운동량을 반대로 뒤집는’ 연산자이다. 드브로이 물질파의 파동함수가 $\exp[-2\pi i(px - Et)/\hbar]$ 인 것을 보면 $\hat{\theta}$ 는 파동함수를 그것의 켈레복소수(complex conjugate)로 만들어 주는 것($\hat{C}$)이라고 미루어 짐작할 수가 있는데, 전자계 또는 spin-1/2계에서는 $\hat{\theta} = -i\hat{\sigma}_y\hat{C}$ 로 표현되기도 하는데 이것은 구체적으로 계의 운동량과 스핀을 반대로 뒤집는 역할을 한다. 이 시간반전 연산자는 Hermitian이 아니기 때문에 그것의 고유상태와 고유치를 운동상수로 취급하지는 않지만, spin-1/2계가 시간반전 대칭성을 가지게 되면 그것에서 스핀과 운동량이 뒤집힌 계가 쌍을 이루며 에너지가 같게 되는데 이것을 이름하여 Kramers pair라고 한다.

한편 시간반전 대칭성이 깨어진 상태가 물리적으로 흥미로운 것이 많다. 가장 흔히 보이는 것이 물질이 자화(ferromagnetic)된 상태로서, spin-up 전자와 spin-down 전자의 숫자가 대당하지 않은, 즉 Kramers pair가 붕괴된 상태이다. 보다 중요한 것이 자기장이 존재하는 상태에서의 전자계의 거동이다.

위의 야구공을 촬영한 비디오와 비교해 본다면, 자기장 속에서의 전자의 운동을 촬영한 비디오가 있다면, 그것을 앞으로 돌리든지 뒤로 돌리든지가 분명히 구분된다. 또한 도체에 전류를 흘려주기 위해서 전압을 인가하는 경우를 살펴보자. 자기장이 존재하는 상황에서는, 전류가 전압을 인가한 방향으로 흐르지 않고, 그것에 수직한 방향으로 휘는 힘을 받게 되는데, 이 때문에 발생하는 성분을 홀전도(Hall conductance)라고 부른다. 외부에서 자기장이 인가된 경우뿐만 아니라 고체 내부의 전자 구조가 시간반전 대칭성이 붕괴된 경우에도 마찬가지로의 Hall 전도 특성이 나타나게 되며, 물리학의 역사에서 가장 중요한 발견 중에 하나인 Quantum Hall effect와 Anomalous Quantum Hall effect가 바로 그것의 예라고 할 수 있다.

최근 연구, Circular photon and circular phonon

최근에 이 분야의 연구자들은 시간반전 대칭성을 인위적으로 조절하기 위하여 자기장 이외의 다양한 외부 요인들을 도입하고 있다. 그 중에 한 예로서, 시간반전대칭성을 유지하던 도체에 원편광의 빛을 인가한 채로 전도실험을 하면 홀전도 특성($\int \sigma_{xy}(t) dt$)이 나타나게 되지만 선편광의 빛을 인가하면 홀전도가 나타나지 않는다는 것이 재미있다. 하지만 이것은 양자역학 선생에게는 좀 불편한 마음을 주기도 하는 것이다. 예를 들어 dipole 근사 하에서 원편광(circular photon)과 선편광(linear photon)이 주는 해밀토니언을 각각 다음과 같이 적었다고 하자.

$$\hat{H}_{circular}(t) = \hat{H}_0 + A_{ext}(\hat{p}_x \cos(\omega t) + \hat{p}_y \sin(\omega t)) \text{ and } \hat{H}_{linear}(t) = \hat{H}_0 + A_{ext} \hat{p}_y \sin(\omega t).$$

이때 시간반전 연산자를 $\hat{\theta} = -i\hat{\sigma}_y \hat{C}$ 로 생각할 경우 그것이 $\sin(\omega t)$ 와 $\cos(\omega t)$ 항에 어떤 영향을 주는지(혹은, 모든 '시간'에서 시간반전대칭성이 깨어져 있다고 해야 할지?)가 분명하지가 않다. 그런데 Floquet 정리를 사용해서 시간축에 대한 푸리에(Fourier) 변환을 고려해 보면, 위의 정적인 해밀토니언($\hat{H}_0$)에서 사용했던 시간반전 대칭성에 대한 논법을 그대로 적용할 수가 있게 된다. 즉 푸리에 변환된 Floquet 해밀토니언의 경우 원편광은 Kramers pair를 유지하게 되고 선편광은 그 쌍을 잃어버리게 되는 것을 확인할 수가 있다. 사실 이것은 몇 줄 글로 적을 내용은 아니고, 이쪽 학계에서 습관적으로 여겨져 왔지만, 분명하게 논증되지도 않은 상황이라, 필자의 연구팀이 학술논문으로 정리를 해서 학계의 논의를 부각시키고자 한다. 위의 $\hat{H}(t)$ 에서 외부장이 원래의 시스템($\hat{H}_0$)을 끌고 다닌다고 생각되어 외부장(external field) 부분을 driver라고 부른다.

신동빈 군의 논문

본 연구팀이 Nat. Comm.(2018)에 발표한 논문은 spin-orbit-coupling(SOC)이 큰 반도체 시스템에 포논이 켜졌을 경우, 외부장이 없이도 포논이 스핀너(spinor)를 끌고 다니는 driver가 된다는 것이다. 다시 말해서 원편광의 포논(circular phonon)은 시간반전대칭성을 실질적으로 붕괴시켜서, 마치 외부에서 가해진 자기장이 그렇게 하듯이, 알짜의 스핀값(net spin moment)을 유발하는 반면, 선편광의 포논(보통의 linear phonon)은 시간반전대칭성을 유지시키며 원래시스템($\hat{H}_0$)의 스핀값을 유지해 준다는 것이다. 우리는 SOC가 큰 반도체 중에서 시간반전대칭성이 있어서 알짜의 스핀값이 존재하지 않는 물질을 대상으로 계산을 진행했다. 구체적으로는 MoS₂ 비롯한 여타의 transition metal dichalcogenide(TMDC) 물질들이다. 지난 3년간 본 연구팀에서 개발해온, 실시간 실공간의 TDDFT 계산을 활용하여 전자-스핀-포논계의 동역학을 실시간으로 추적하였다. 재미나게도 TMDC에 있는 특정 광학모드(optical phonon mode)가 스핀방향에 매우 민감한 영향을 주는 것이며, 포논이 circular일 때와 linear일 때, net spin 값이 달라진다는 것을 발견하였다. 원래 자성이 없던 물질에다 적외선을 인가하여 포논을 흥분시켜서 자기모멘트를 유발한다는 것이고 보니, 사실상 흥미 있는 연구결과이다. 그렇다고 적외선이 '반도체를 자석으로 만들었다'라고까지 말하고 싶지는 않고, 스핀계의 시간반전대칭성이 포논의 편향성(polarity)에 의해서 달라질 수 있다는 것을 보여줬다고 말하고 싶다. 언론 홍보용 글을 쓰시는 기자님께서 여러 번 말이 너무 어렵다고 하여, '그럼 그냥 자석이라고 하자'고 했으나, 끝내 흑세무민(惑世誣民)이 아니었던가 싶다.

마무리하며

소망하기를 이 글을 읽는 사람이 아무도 없거나, 혹여 있더라도 앞부분만 살짝 보기를 바라게 된다. 기왕에 쓰기로 했으니, 대중이 읽을 만한 글을 써보자고 시작을 했다가 여섯째 단락에 와서 살짝 포기를 했다. 쓰다 보니 자꾸 말이 많아져서 대중은커녕 인접분야의 과학자들도 읽다가 싫증을 낼 것이 뻔하다. 앞에 필자 소개면이 있을 것이다. 까마득한 옛날에 서울대학교 공과대학 토목공학과를 다니다가, 나 자신의 성장에 대해서 몇 가지 드는 생각이 있어서, 물리학과 학부 과목들을 수강하고 대학원을 물리학과로 진학했다. 졸업장을 속일 수는 없으니 공과대학을 졸업했다고는 하지만, 물리학자로서의 학문적 수련(academic training)의 배경이나 history를 얘기해야 하는 것 같아, background profile에 약간 애매한 면이 있다는 것을 본 글에 남긴다.