

## 스핀편극 각도분해 광전자 분광학을 이용한 자성연구

김형도\*

포항가속기연구소, 포항시 남구 효자동 산31, 790-784

(2012년 11월 23일 받음, 2012년 12월 13일 최종수정본 받음, 2012년 12월 13일 게재확정)

한 고체의 자성은 원자가 전자의 양자역학적 상태에 의해 결정되는데, 스핀편극 각도분해 광전자 분광학(SP-ARPES)은 고체 안의 전자상태를 조사할 수 있는 가장 강력한 방법으로 어떤 물질의 자성을 이해하는 데에 많은 도움을 준다. 본고에서는 SP-ARPES 방법에 대한 간략한 소개와 이를 통해 얻을 수 있는 물리적 정보에 대해 기술한다.

**주제어** : 스핀편극 각도분해 광전자 분광학, 전자구조, 자성구조

### I. 서 론

쇠붙이를 잡아당기는 성질이 발견된 이래로 자석은 많은 이들의 호기심을 불러일으켰지만, 그 물리적 기원이 밝혀지기 시작한 것은 지난 세기 초, 양자역학이 성립되었을 때부터로 아직 백년도 채 되지 않았다. 양자역학에 따르면, 고체 안에서 전자의 스핀 정렬 상태가 자성을 결정하며, 이 정렬 상태를 주는 스핀들 사이의 상호작용은 스핀의 자기모멘트에 의한 것이 아니라, 전자들 사이의 쿨롱 상호작용에 기인한다 [1]. 즉, 전자들이 고체 안에서 그 스핀에 따라 양자역학적 상태가 어떻게 다른지를 이해하면 고체의 자성을 이해할 수 있게 되고, 거꾸로 그 양자역학적 상태를 잘 예측할 수 있는 이론 도구가 있으면 유용한 자성물질을 개발하는 데에 큰 쓸모가 있을 것이다.

고체 안의 전자의 양자역학적 상태를 결정하는 해밀토니안은 고체의 결정구조만 알면 쉽사리 알 수 있지만, 그에 따른 슈뢰딩거 방정식을 푸는 것은 만만치 않은 일이다. 그러나 컴퓨터의 계산 속도가 눈부시게 발전하였고, 전자들 사이의 다체(many-body) 효과를 다룰 수 있는 많은 이론적 기법들이 개발됨에 따라, 여러 분광학적 실험도구들과 더불어 여러 가지 고체들의 자성에 대한 수수께끼를 하나씩 밝혀내가고 있다.

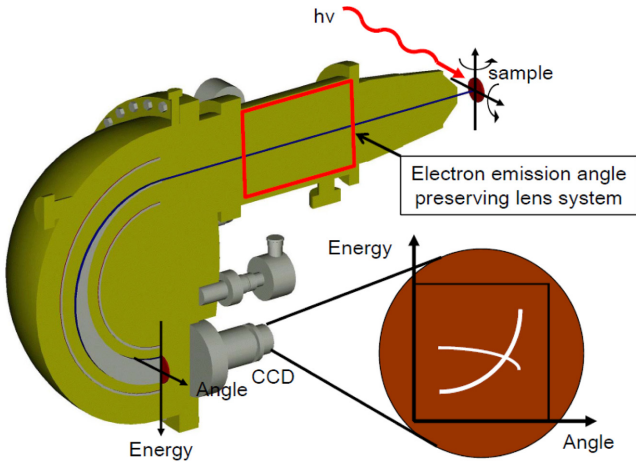
여러 분광학적 방법들 중에서도 각도분해 광전자 분광법(angle-resolved photoemission spectroscopy: ARPES)은 아인슈타인의 광전효과에 의해 방출된 광전자의 상태를 조사함으로써, 고체 안에 생성된 전자구멍의 상태를 알아내는 것이다 [2]. 최근 광전자 검출기의 발전으로 광전자의 상태, 즉 에너지와 운동량에 대한 분해능이 매우 좋아져, 고체의 성질을

이해하는 데에 큰 도움을 주고 있다. 이와는 독립적으로 광전자의 스핀 검출기도 그 효율을 높이기 위해 발전을 거듭해, 고체의 자성에 관해 매우 중요한 정보를 제공하고 있다. 여기서는 ARPES 및 스핀 검출기를 이용한 자성연구 기법에 대한 소개와 그 대표적인 예를 보여줄 것이다.

### II. ARPES를 이용한 에너지띠 측정

ARPES는 광전자가 단결정 시료로부터 방출될 때의 각도와 그 운동에너지를 측정하는 기법이다. 운동량 및 에너지 보존법칙, 고체 안에서 전자가 느끼는 퍼텐셜, 즉 내부 퍼텐셜을 적절히 고려하면, 생성된 전자구멍의 결정운동량 및 속박 에너지를 결정할 수 있다. 우리가 실험으로 알아내야 할 것은 에너지와 3차원 운동량 및 내부 퍼텐셜인데, 자유전자의 에너지-운동량 관계식을 이용하면 3개의 실험변수가 필요하며, 광전자의 방출각도는 2차원이어서 시료에 쏘여주는 빛 에너지를 바꿈으로써 나머지 한 차원을 결정할 수 있다. 즉, 3차원 물질의 에너지띠 구조를 측정하기 위해서는 포항가속기 연구소와 같이 빛 에너지를 연속적으로 바꿀 수 있는 방사광 시설이 필요하고, 고정된 빛 에너지만을 사용할 수 있는 실험실에서는 그래핀, 구리산화물 고온초전도체 등과 같은 2차원 물질이나 체인구조를 갖는 1차원 물질에 대해서만 전자의 결정운동량을 결정할 수 있다.

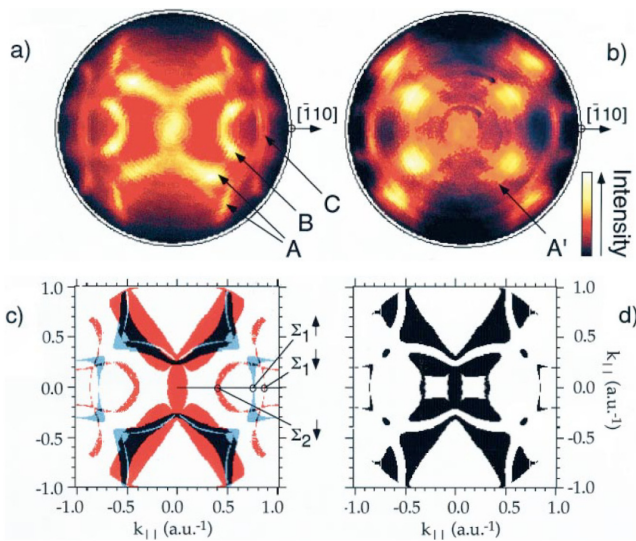
20세기말 즈음에 광전자의 운동에너지를 측정하기 위해 필요한 전원장치의 정밀도 및 전자렌즈의 발전으로 그 에너지 분해도는 1 meV 이하 수준으로 향상되었다. 또한, 광전자의 방출각도를 보존하는 전자렌즈 시스템이 개발됨에 따라 사방으로 흩어지는 광전자를 동시에 측정할 수 있게 됨으로써, ARPES의 각도분해도, 즉 운동량분해도가  $0.01 \text{ \AA}^{-1}$  이하 수준으로 좋아졌고, 측정각도의 범위 또한 빛 에너지에 따라 다



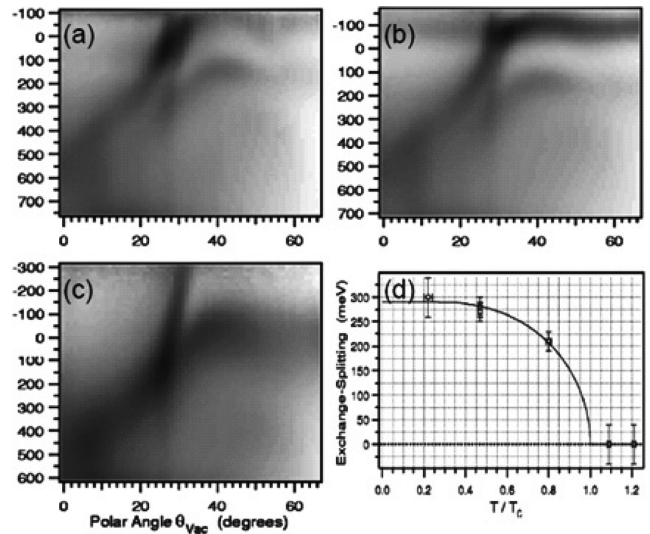
**Fig. 1.** (Color online) Schematic view of a two-dimensional ARPES system with a concentric hemispherical analyzer.

르긴 하지만 브릴루앙 영역(보통  $1.5 \text{ \AA}^{-1}$  정도)의 한 방향을 한 번에 측정할 수 있도록 발전하였다. 이로부터 전자의 양자역학적 상태가 고체의 성질에 어떻게 기여하는지를 이해하는 데에 ARPES가 큰 역할을 할 수 있게 되었다.

Fig. 1은 동심반구형 전자분석기를 이용하여 ARPES 스펙트럼을 얻는 모식도를 보인 것으로, MCP, 형광스크린, CCD 카메라를 조합하여 광전자의 개수를 세면, 그림과 같은 1차원 에너지띠 구조를 얻을 수 있고, 그림에 보인 각도와 수직인 각도로 시료나 분석기를 돌리고, 빛 에너지를 변화시키면 3차원 에너지띠 구조를 얻을 수 있다. 최근에는 비행시간 측정법을 이용하여 두 방출각도를 동시에 측정할 수 있는 전자



**Fig. 2.** (Color online) ARPES measurements of Ni(110) Fermi surfaces at (a)  $T/T_c \sim 0.48$ , (b)  $T/T_c \sim 1.1$ . (c) Spin-polarized and (d) unpolarized band calculation results. (c) and (d) correspond to the cases of (a) and (b), respectively [3].



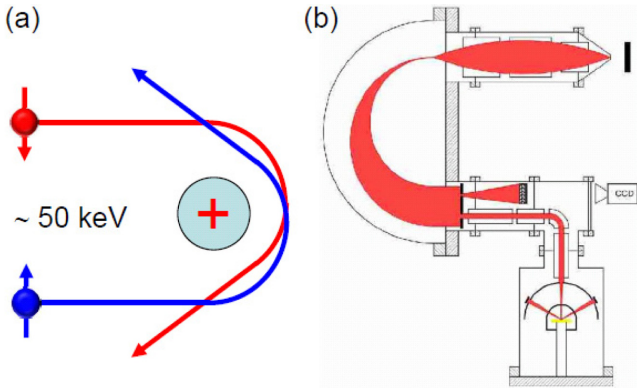
**Fig. 3.** ARPES spectra from Ni(111) at (a)  $0.22 T_c$ , (b)  $0.47 T_c$ , and (c)  $1.09 T_c$ . (d) Temperature-dependent exchange splitting of  $d$ -bands extracted from the ARPES data [4].

에너지 분석기도 개발되어(펄스 광원을 이용해야하는 단점 혹은 장점이 있지만) ARPES의 측정효율을 더욱 높일 수 있게 되었다.

ARPES를 이용한 강자성체의 전자구조 실험에 대한 한 예로 Fig. 2에 Aebi 등이 유동전자(itinerant electron) 강자성체인 니켈에 대해 페르미 면을 측정하는 것을 보였다[3]. Fig. 2(a)는 온도가 큐리 온도의 반 정도일 때, He I 광원( $h\nu = 21.2 \text{ eV}$ )을 이용하여 Ni(110) 표면에서 얻은 것이고, (b)는 큐리 온도보다 약간 더 높을 때 얻은 것으로, 페르미 준위에서의 ARPES 스펙트럼의 세기가 큰 곳이 페르미 면에 해당한다. 큐리 온도 전후로 두 페르미 면이 매우 다른 양상을 보이는데, 이를 설명하기 위해 스핀편극 에너지띠 계산을 강자성 상태와 상자성 상태일 때 수행한 결과가 각각 Fig. 2(c)와 (d)이다. 다수 스핀에 의한 페르미 면은 파란색으로, 소수 스핀에 의한 것은 붉은색으로 나타내었는데, 실험결과가 매우 잘 설명됨을 알 수 있다[3]. 니켈과 같이 유동전자에 의해 강자성이 생기는 물질은 스토너 모형으로 보통 설명되는데, 이에 따르면 전자의 스핀 방향에 따라 에너지띠가 교환 상호작용에 의해 분리되고, 그 정도는 물질의 자화량에 비례한다. Fig. 3은 니켈 3d 에너지띠의 교환 상호작용에 의한 분리가 온도에 따라 변화하는 것을 보여주는 것으로 ARPES 실험은 니켈의 경우 스토너 모형이 잘 적용될 수 있음을 보여준다[4].

### III. 모트 검출기

위에서 기술한 ARPES 실험은 특정 에너지띠에 대한 스핀 정보를 스핀편극 에너지띠 계산에 의존해야 하는 약점이 있



**Fig. 4.** (Color online) (a) Illustration of Mott scattering. (b) Schematic diagram of a Mott detector attached to a concentric hemispherical analyzer.

기 때문에 광전자의 스핀을 측정함으로써 각각의 에너지띠가 갖는 스핀 상태를 알아내려는 많은 노력들이 이루어져왔다. 특히, 이론적으로 설명이 어려운 물질의 경우, 실험으로 전자의 스핀 상태를 알아내는 것은 그 자성을 이해하기 위해서 뿐만 아니라 이론의 발전을 추동하기 위해서도 매우 중요하다고 할 수 있다.

스핀을 검출할 수 있는 간단한 방법으로 전자에 직접 자기장을 거는 슈테른-게를라흐 방법을 생각할 수 있지만, 자유전자의 경우에는 상대론적 효과에 의해 스핀 방향을 구별해내는 것이 거의 불가능하다. 이에 따라 전자의 스핀-궤도 상호작용이나 교환 상호작용이 관련된 모트 산란을 이용해서 전자의 스핀 편극을 측정하는 것이 널리 이용되고 있다. Fig. 4(a)는 모트 산란의 원리를 간단히 나타낸 것이다. 수십 keV 정도의 높은 에너지를 갖는 전자가 금과 같이 매우 무거운 원자를 만나면 스핀-궤도 상호작용 때문에 스핀과 전자의 진행 방향이 만드는 평면의 좌우 방향으로 전자의 산란단면에 차이가 생긴다. 이 평면의 좌우에 전자계수기(보통 채널트론을 사용한다)를 Fig. 4(b)와 같이 대칭으로 설치하면, 두 전자계수기의 전자 개수 차이  $A_x$ 는 다음과 같이 주어진다.

$$A_x = \frac{I_L - I_R}{I_L + I_R}$$

100% 스핀편극된 전자로부터 측정되는 이 차이는 전자 에너지, 산란물질 및 그 두께, 산란각도 등에 의해 달라지는데, 이를 셔먼(Sherman) 함수  $S$ 라고 한다[5]. 이는 보통 실험을 통해 얻어지고, 전자의 스핀편극  $P_x$ 는 이 두 값으로부터 다음과 같이 주어진다.

$$P_x = A_x/S.$$

셔먼 함수의 값은 산란물질의 두께가 매우 얇은 경우 0.5 정

도까지 도달할 수 있다. 그런데 원래의 전자 중 극히 일부  $I/I_0$ 만이 전자계수기에 도달하며, 스핀 검출기의 감도지수(*figure of merit*)는 다음과 같이 주어진다.

$$\epsilon = (I/I_0)S^2.$$

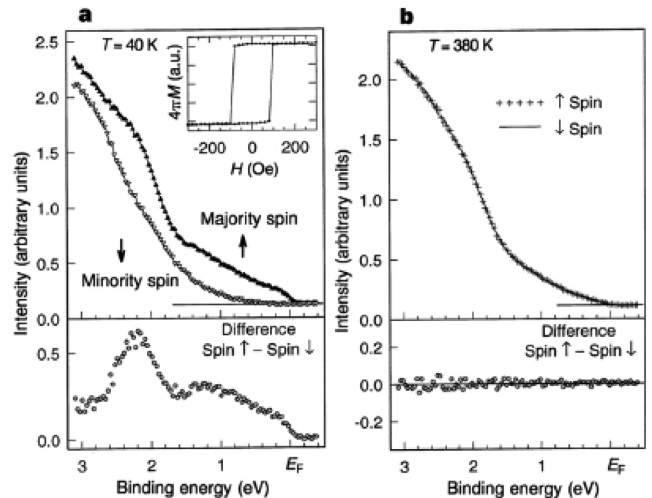
이 값은 보통  $10^{-4}$ 에서  $10^{-3}$  정도로 매우 작기 때문에 좋은 S/N비를 갖는 스펙트럼을 얻기 위해서는 원래 ARPES가 갖고 있던 에너지분해능을 많이 잃어버릴 수밖에 없고, 이를 높이기 위한 많은 노력들이 경주되고 있다.

광전자의 에너지 및 운동량에 따른 스핀편극  $P(E, \mathbf{k})$ 를 측정하면 ARPES 스펙트럼  $I(E, \mathbf{k})$ 로부터 스핀편극(SP) ARPES 스펙트럼을 다음과 같이 얻을 수 있다.

$$I_{\uparrow, \downarrow}(E, \mathbf{k}) = I(E, \mathbf{k})(1 \pm P(E, \mathbf{k}))/2.$$

강자성체의 스핀에 따른 ARPES 스펙트럼을 얻기 위해서는 모트 검출기의 전자계수기와 수직 방향으로 시료를 자화시켜야 하는데, 초고진공 챔버 안의 좁은 공간에서 강력한 자기장을 걸기는 매우 어렵고, ARPES 실험은 자기장이 없는 상황에서 이루어져야 하기 때문에, 시료의 잔류자화량이 포화자화량과 비슷한 경우에만 강자성 상태의 스핀편극 전자구조에 대해 올바른 정보를 얻을 수 있다는 어려움이 있다.

Fig. 5는 SP-ARPES의 한 예로, 거대자기저항물질인  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ 의 스펙트럼이 상전이 전후로 스핀에 따른 전자 상태가 어떻게 바뀌는지를 보여준다. 이 스펙트럼에 의하면 상자성 부도체일 때에는 전자 상태가 스핀 방향과 상관없이 있는데, 온도를 낮춰 강자성 도체 상태가 되면 강자성을 주는 스핀만 전기 전도에 기여하는 반금속임을 알 수 있다[6].



**Fig. 5.** Spin-polarized photoemission spectra of  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  (a) at  $T = 40 \text{ K}$  in the ferromagnetic phase and (b) at  $T = 380 \text{ K}$  in the paramagnetic phase [6].

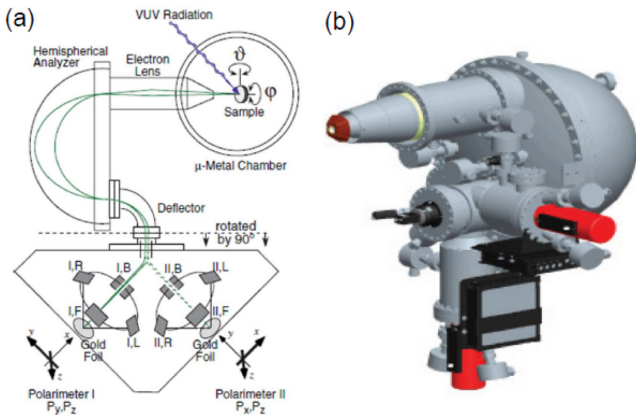


### IV. 3차원 모트 검출기

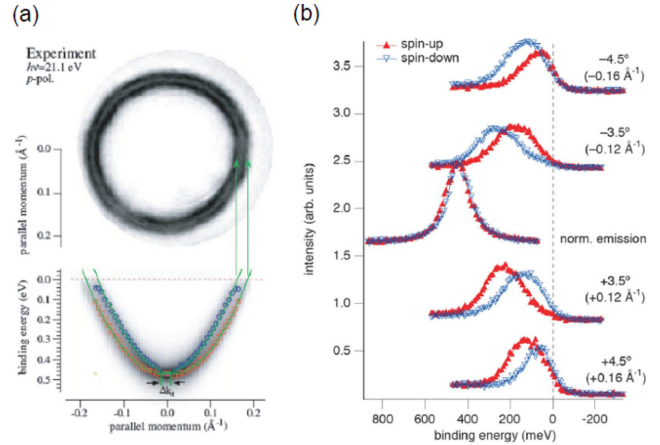
위에서 기술된 모트 검출기는 강자성체의 경우 스핀 검출기가 원하는 방향으로 시료의 스핀을 정렬시켰을 때에만 SP-ARPES를 얻을 수 있다는 단점이 있다. 최근에 스핀소자에 대한 관심이 높아지면서, 전자의 운동방향에 따라 스핀편극을 보이는 시스템에 대한 관심이 많아졌다. 대표적인 예로 금속의 표면상태의 라쉬바(Rashba) 스핀-궤도 분리나 위상절연체 등을 들 수 있다. 이러한 물질들은 전체적으로는 스핀편극을 가지지 않으나 특정한 전자 운동량에 대해서는 스핀편극을 가지고 있다. 따라서 ARPES와 임의의 방향에 대한 스핀편극을 측정할 수 있는 모트 검출기를 결합하면 이에 대해 유용한 정보를 얻을 수 있다.

Fig. 6(a)는 임의의 방향에 대한 스핀 정보를 얻기 위한 3차원 모트 검출기의 개략도를 보인 것이다. 앞에서 기술한 것과 같이 전자의 스핀편극된 방향에 수직으로 좌우대칭의 전자계수기를 넣는 것 외에도 이와 수직으로 전자계수기를 넣어서 하나의 이차원 스핀 검출기를 만들고, 또 이와 수직한 방향으로 똑같은 스핀 검출기를 붙이면 3차원 방향 모두에 대한 스핀 정보를 알 수 있게 된다. 즉, 이러한 스핀 검출기가 Fig. 6(b)와 같이 ARPES 장치와 결합되면, 전자의 운동량에 따라 어떠한 스핀편극을 갖는지를 측정할 수 있게 된다.

Fig. 7은 Au(111) 표면의 쇼클리(Shockley) 표면상태[9]에 대한 SP-ARPES 실험결과를 보여준다[10]. 이 표면상태는 표면에서의 전기적 퍼텐셜 차이에 의한 라쉬바 스핀-궤도 상호작용에 의해 그림과 같이 두 개의 분리된 페르미 면을 갖는데, 이 페르미 면에 놓여 있는 전자의 스핀 방향은 페르미 면에 대해 접선방향이고 안과 밖의 페르미 면에 따라 그 방향이 정반대라는 걸 알 수 있다.

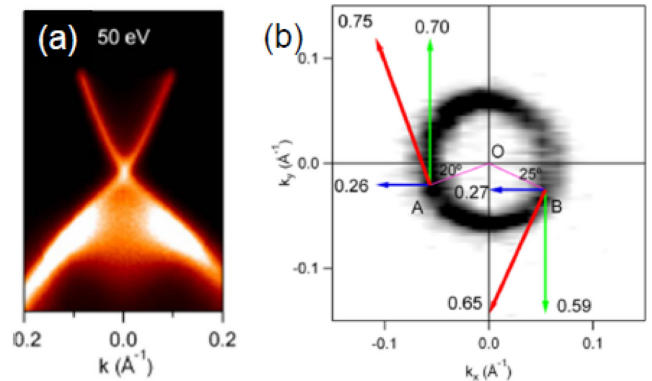


**Fig. 6.** (Color online) (a) Schematic diagram of a three-dimensional Mott polarimeter. The polarimeter system is shown 90° rotated for graphical clarity [7]. (b) Commercial ARPES spectrometer & three-dimensional Mott polarimeter [8].

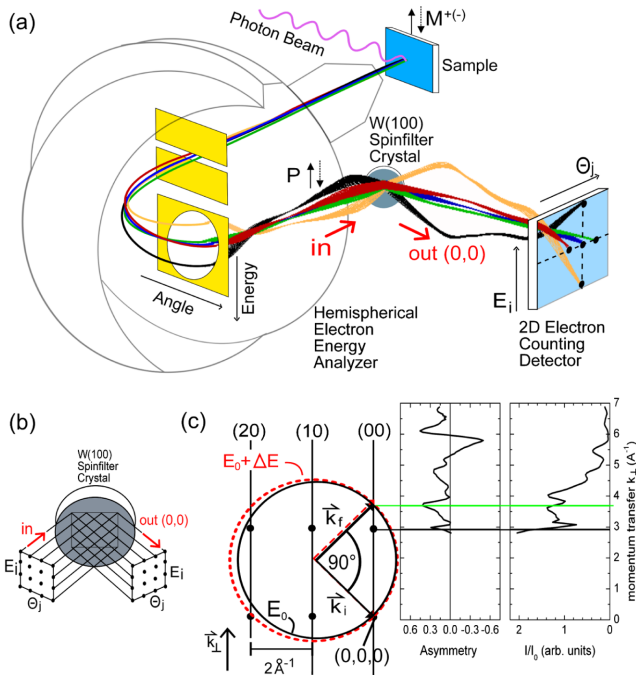


**Fig. 7.** (Color online) (a) Fermi surface and ARPES spectra of the spin-orbit split Au(111) Shockley surface states [9] and (b) spin-polarized ARPES spectra [10].

더 극적인 예는 위상절연체라고 할 수 있는데, 덩치(bulk) 전자의 위상학적 상태에 따라 표면에 위상학적으로 보호되는 표면상태가 생기는 것이다. 이는 두 개의 라쉬바 페르미 면이 시료 양쪽의 표면에 나뉘어 존재하는 것과 비슷한 것으로, 전자의 운동방향이 반대면 전자의 스핀방향 또한 반대기 때문에 스핀소자로서 가장 유용한 물질로 각광을 받고 있다. 특히, 위상절연체의 표면상태의 페르미 면의 개수는 홀수(보통은 스핀 겹침에 의해 짝수)라는 독특한 성질을 가지기 때문에 APRES로도 쉬이 그 가부를 결정할 수 있으나, SP-ARPES를 통해 더 확실한 증거를 얻을 수 있다. 이를 보인 것이 Fig. 8의 예이다. Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>는 Fig. 8(a)와 같이 Γ점 주위로 표면상태가 페르미 면을 갖는 위상절연체인데, SP-ARPES 실험을 통해 Fig. 8(b)와 같이 전자의 운동량에 따라 페르미 면의 접선 방향으로 스핀편극된 상태를 가진다는 것을 알 수 있다[11].



**Fig. 8.** (Color online) (a) ARPES spectra of Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>. (b) Spin polarization in Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>. Red arrows represent the total spin polarization [11].



**Fig. 9.** (Color online) (a) Schematic diagram of a multichannel spin polarimeter setup. (b) Geometry of the scattering process for simultaneous acquisition of 16 data points and (c) corresponding momentum scheme in the kinematic approximation for specular reflection for W(100) [14].

### V. 모트 검출기의 성능향상

앞에서도 기술한 바와 같이 모트 검출기의 감도지수는 매우 낮기 때문에 이를 개선하려는 많은 노력들이 이루어져 왔다. 예를 들면, 철 박막을 산란물질로 이용하는 시도[12], 비행시간 전자분석기를 사용하려는 시도[13] 등이 이루어졌고, 현재 SP-ARPES의 에너지분해도는 50~100 meV 정도에 이른다.

ARPES 스펙트럼 측정의 경우에는 이차원 검출기를 통해 그 측정 성능이 비약적인 발전을 이룬 반면, 모트 검출기의 경우에는 기존의 방법을 답습하기 때문에 새로운 광전자 검출기법을 잘 활용하지 못하는 면이 있었다. 최근에는 이를 극복하기 위해 Fig. 9와 같이 이차원 검출기를 이용한 방법이 제안되었다[14]. 이를 이용하면 수백 배 정도로 검출효율을 높일 수 있기 때문에, 앞으로의 발전이 기대된다.

### VI. 결 론

이상에서 SP-ARPES의 원리 및 이를 이용한 여러 응용 사례들을 보였다. 앞에서 보듯이 SP-ARPES는 강자성체의 전자구조만이 아니라, 스핀소자로 사용될 수 있는 물질의 전자구조를 파악하는 데에 가장 강력한 도구가 된다. 현재 우

리나라에 모트 검출기는 포항방사광가속기의 2A 빔라인에 설치된 것이 유일한데, 아직 널리 활용되지 못하고 있는 것이 현실이고, 세계적 수준의 SP-ARPES 실험을 수행하기에는 많은 점이 모자라다. 기초과학연구에 많은 투자가 이루어지는 현실에 비추어 SP-ARPES 장비 마련 및 이용에도 많은 이들의 관심이 모아지길 바란다.

### 감사의 글

이 논문은 한국연구재단의 지원(2009-0090561)을 받아 수행되었다.

### 참고문헌

- [1] R. M. White, Quantum Theory of Magnetism, 3rd ed., Springer, Berlin (2007).
- [2] S. Hüfner, Photoelectron Spectroscopy: Principles and Applications, 3rd ed., Springer, Berlin (2003).
- [3] P. Aebi, T. J. Kreutz, J. Osterwalder, R. Fasel, P. Schwaller, and L. Schlapbach, Phys. Rev. Lett. **76**, 1150 (1996).
- [4] T. J. Kreutz, T. Greber, P. Aebi, and J. Osterwalder, Phys. Rev. B **58**, 1300 (1998).
- [5] J. Kessler, Polarized Electrons, 2nd ed., Springer, Berlin (1985).
- [6] J.-H. Park, E. Vescovo, H.-J. Kim, C. Kwon, R. Ramesh, and T. Venkatesan, Nature **392**, 794 (1998).
- [7] M. Hoesch, T. Greber, V. N. Petrov, M. Muntwiler, M. Hengsberger, W. Auwärter, and J. Osterwalder, J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. **124**, 263 (2002).
- [8] <http://www.vgscienta.com>.
- [9] J. Henk, M. Hoesch, J. Osterwalder, A. Ernst, and P. Bruno, J. Phys.: Condens. Matter **16**, 7581 (2004).
- [10] M. Muntwiler, M. Hoesch, V. N. Petrov, M. Hengsberger, L. Patthey, M. Shi, M. Falub, T. Greber, and J. Osterwalder, J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. **137-140**, 119 (2004).
- [11] Z.-H. Pan, E. Vescovo, A. V. Fedorov, D. Gardner, Y. S. Lee, S. Chu, G. D. Gu, and T. Valla, Phys. Rev. Lett. **106**, 257004 (2011).
- [12] T. Okuda, Y. Takeichi, Y. Maeda, A. Harasawa, I. Matsuda, T. Kinoshita, and A. Kakizaki, Rev. Sci. Instrum. **79**, 123117 (2008).
- [13] C. Jozwiak, J. Graf, G. Lebedev, N. Andresen, A. K. Schmid, A. V. Fedorov, F. El Gabaly, W. Wan, A. Lanzara, and Z. Hussain, Rev. Sci. Instrum. **81**, 053904 (2010).
- [14] M. Kolbe, P. Lushchik, B. Petereit, H. J. Elmers, G. Schön-hense, A. Oelsner, C. Tusche, and J. Kirschner, Phys. Rev. Lett. **107**, 207601 (2011).

## Spin-Polarized Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy Study of Magnetism

**Hyeong-Do Kim\***

*Pohang Accelerator Laboratory, Pohang 790-784, Korea*

(Received 23 November 2012, Received in final form 13 December 2012, Accepted 13 December 2012)

Magnetic properties of a solid are determined by the quantum mechanical states of valence electrons. Spin-polarized angle-resolved photoemission spectroscopy (SP-ARPES) is a powerful tool to probe the electronic states in a solid and provides valuable information on magnetic properties of a solid. In this article, brief introduction to SP-ARPES and its applications are provided.

**Keywords :** spin-polarized angle-resolved photoemission spectroscopy, electronic structure, magnetic structure