

초고진공 저온 주사터널 현미경 장치의 최신 경향

<https://doi.org/10.5757/vacmac.3.4.14>

함응돈, 염한웅

Current Trend of Ultrahigh Vacuum Low Temperature Scanning Tunneling Microscopy

Ungdon Ham, Han Woong Yeom

In this article, we will summarize recent advances in ultrahigh vacuum (UHV) low-temperature scanning tunneling microscopy (STM) during the last decade. Leading STM groups have finished or are constructing UHV milli-Kelvin high magnetic field STM capable of a few tens of milli-Kelvin and ~ 10 tesla. Applications with UHV sub-Kelvin high magnetic STM have been increased since mid-2000's. Active research using UHV low temperature tuning fork atomic force microscopes and UHV photon low-temperature scanning tunneling microscopes will be introduced. Considering these advances of UHV low-temperature STM we will discuss next trend in STM in the near future.

본 원고에서는 2010년대 중반 현재 초고진공 환경에서 작동 가능한 저온 주사터널 현미경의 세계적 흐름을 정리 및 소개를 한다. 벡터형 초전도 자석을 장착한, 저진동 초고진공용 희석식 냉동기의 개발에 힘입어 수십 밀리 켈빈 이하의 온도 대 및 10 테슬라의 고자기장하의 실험 조건을 가지는 밀리 켈빈 주사터널 현미경이 세계 선도 그룹에서 속속 구축이 완료되고 있다. 또한 2000년대 중반 이후 본격적으로 시작된 1 켈빈 이하 고자기장 냉동기를 이용한 저온 주사 터널 현미경의 응용 범위 역시 넓어지고 있다. 튜닝 포크를 이용한 저온 원자 힘

현미경 및 저온 광자 주사터널 현미경을 이용한 연구도 활발히 진행되고 있다. 이러한 논의를 바탕으로 2020년대에 본격 출현할 초고진공 저온 주사터널 현미경의 흐름을 예측해 보겠다.

1. 서론

초고진공 환경에서 샘플의 처리 및 분석이 가능한 초고진공 저온 주사터널 현미경은 1990년대 초반 본격적으로 등장하여, 현재까지 수십 년간 주사터널 현미경을 이용한 연구를 선도하고 있다. 액체 헬륨 저장기(reservoir)의 4.2 켈빈 온도를 이용한 4.2 ~ 10 켈빈의 샘플 온도 대역을 가지는, 초고진공 4 켈빈 저온 주사터널 현미경은 현재까지도 초고진공 주사터널 현미경의 기본형으로서 여러 초고진공 환경에서의 표면 연구에 사용되어 왔다. 2000년대 중반 이후에 본격적으로 등장한 1 켈빈 이하 고자기장 주사터널 현미경은, 10 테슬라 정도의 고자기장에 의한 전자 에너지 레벨의 지만 분열(Zeeman splitting)이 열적 동요보다 더 큰 실험 조건을 만들어내기 때문에 본격적인 단일 전자 스핀 관련 연구 및 위상 부도체의 연구를 위시한 여러 중요한 연구를 가능케 해왔다.

지난 이십 년 이상의 저온 및 고자기장 경험을 바탕으로 이제 2010년대 중반 저온 주사 터널 현미경의 선도 흐름은 10 테슬라 정도의 고자기장 환경에서 수십 밀리

〈저자 약력〉

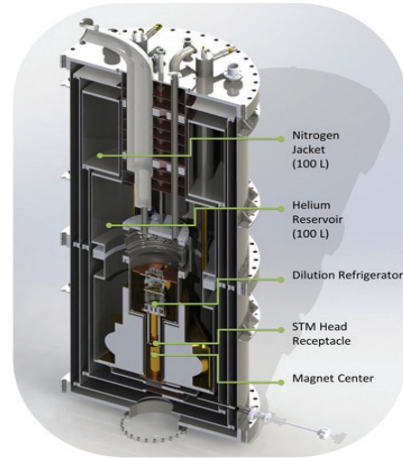
- 함응돈 연구원은 2007년 미국 UC Irvine 에서 박사학위를 받았고, 2013년부터 기초과학연구원 원자제어 저차원 연구단의 연구위원으로 재직하고 있다. (uham@ibs.re.kr)
- 염한웅 교수는 1996년 일본 도호쿠 대학에서 박사학위를 받았고, 연세대 물리학과(2000-1010) 을 거쳐 2010년부터 현재까지 포항공대 물리학과 교수로 재직하고 있으며, 2013년부터 기초과학연구원 원자제어 저차원 연구단의 단장으로 재직하고 있다. (yeom@postech.ac.kr)

켈빈의 실험 온도 대역을 가능케 하는, 초고진공 밀리켈빈 고자기장 주사터널 현미경이라고 할 수 있다. 이러한 극한 실험 조건은 2000년대 중반까지만 해도 주사터널 현미경 장치에서는 구현이 불가능해서, 소위 “수송 현상 연구 공동체(transport research community)” 만이 보여줄 수 있는 실험 조건이라고 여겨졌었다. 그러나 이제 초고진공 밀리켈빈 고자기장 주사터널 현미경의 출현으로 수송 현상 연구 공동체의 실험 조건과 동일한 실험 조건 대역의 연구를 할 수 있게 되었다. 또한 더 나아가, 뒤에서 논의할 원자간 힘 현미경 및 광자 주사터널 현미경의 기법의 완속도로 인해서, 주사터널 현미경만이 가능케 하는 더 극한 실험 조건하의 연구도 가능하게 되어서, 2010년대 중반인 현재를 초고진공 주사터널 현미경의 황금시대라고 부를 수도 있겠다.

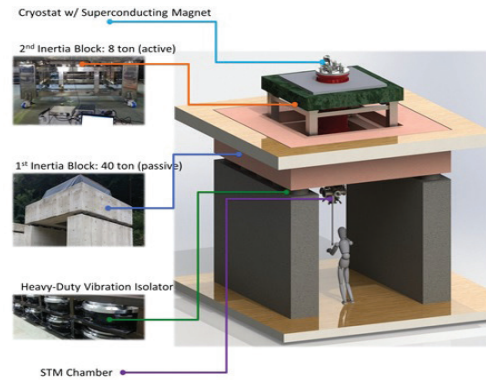
본 원고에서는 본 연구단에서 구축중인 또는 구축 완료한 저온 주사 터널 현미경 장치를 중심으로, 1) 초고진공 밀리켈빈 고자기장 주사터널 현미경에 대한 소개를 한 뒤, 2) 초고진공 1켈빈 이하 고자기장 주사터널 현미경에 대한 설명을 한 뒤, 2016년 현재까지는 4.2 켈빈 저온 주사터널 현미경에만 구현이 되었으나, 1 켈빈 이하 또는 수십 밀리켈빈의 온도 대에서 구현이 앞으로 빠리는 수년 내에 가능할 것으로 여겨지는, 3) 튜닝 포크 원자간 힘 현미경 (tuning-fork atomic force microscope) 과 4) 광자 주사터널 현미경을 소개하려 한다. 또한 결론부에서는 이러한 논의를 바탕으로, 2020년대의 저온 주사터널 현미경의 세계적인 흐름을 감히 예측해보려 한다.

2. 초고진공 밀리켈빈 고자기장 주사터널 현미경

2016년 말 현재까지 세계 수준의 학술 문헌에 게재된 결과를 생성해낸 밀리켈빈 고자기장 주사터널 현미경은 두세 대 정도라고 말할 수 있다 [1-2]. 또한 세계 곳곳에서 선도 그룹들은 빠짐없이 밀리켈빈 고자기장 주사터널 현미경을 구축 중에 있다. 현재 구축중인 장치까지 고려한다면 2020년대에 들어서는 10대 남짓한 밀리켈빈 고자기장 주사터널 현미경이 작동 될 수 있을 것이다. 이러한 추세로 보면 수년 내에 밀리켈빈 고자기장 주사터널 현미경의 보유 여부가 세계 선도 주사터널 현미경 그룹 인지를 가르는 하나의 기준이 될 것이라고 말할 수 있을



[Fig. 1] Schematic of Cryostat and Superconducting Magnet for our ultrahigh vacuum milli-Kelvin scanning tunneling microscope



[Fig. 2] Overall Schematic of our ultrahigh vacuum milli-Kelvin scanning tunneling microscope

것이다. 초고진공용 밀리켈빈 고자기장 주사터널 현미경을 위한 강력한 냉동 파워를 갖는 희석식 냉동기가 지난 십 년간 몇몇 냉동기 제작사들에 의해서 개발되어 왔고, 앞으로도 저진동 소형 희석식 냉동기가 계속 개발될 것으로 예상되어 2020년대에는 바야흐로 초고진공 밀리켈빈 고자기장 주사터널 현미경의 시대가 될 것이다.

헬륨-4와 그 동위 원소인 헬륨-3의 혼합 용액의 끓는점의 온도가 100 밀리켈빈 이하로 떨어지는 현상을 극대화한 희석식 냉동방식과 벡터형 초전도 자석을 이용하게 되어 [3], 샘플의 미세한 전자적 구조 및 기본 여기 상태 (elementary excitations)를 측정할 수 있게 해준다. 더 나아가, 본 연구단에서는 전자 스핀과 핵 스핀과의 초미

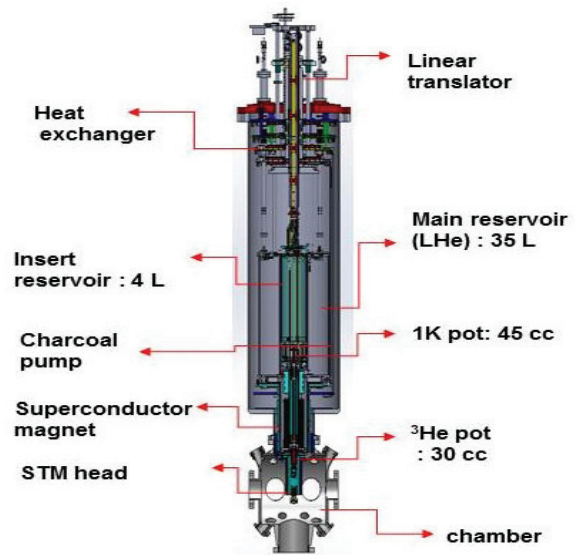
세 상호작용(hyperfine interaction)을 이용하여 핵 스핀의 검출과 그 스핀 상태의 조작에 도전하려 하며 [4], 이의 성공적인 검출 시에는 현재 고체물리 연구 범위를 핵 스핀의 영역까지 본격적으로 넓히는 의미 있는 일이라 말할 수 있다.

그림 1은 본 연구단에서 구축중인 초고진공 밀리켈빈 주사터널 현미경을 위한 냉동기의 개요를 보여준다. 강력한 냉동 파워에 힘입어 10 밀리 켈빈 또는 그 이하의 실험 온도를 확보할 수 있을 것으로 기대되며, 9+2+2 테슬라의 삼차원 벡터형 초전도 자석을 장착하여 각종 단일 전자 스핀 및 핵 스핀의 성질 등의 자성 연구에 사용될 것이다. 그림 2에서는 진동 방지 대책 및 전체적인 시스템 개요를 보여준다.

초고진공 밀리켈빈 고자기장 주사 터널 현미경에 관련된 중요한 이슈에 언급한다면, 1 켈빈 이하 밀리켈빈 온도 영역에서는 샘플 온도의 정의가 엄밀해져야 한다. 팁과 샘플의 온도가 다를 수 있음은 물론이고, 샘플이나 팁 안의 여러 자유도들의 온도가 각기 다를 수 있다는 것이다. 금속 안의 전자 온도, 구성원자들로 이루어진 격자 온도, 그리고 본 연구단에서 주 연구 대상으로 정한 핵 스핀의 온도가 각기 다른 온도에 있을 수 있다. 서로 다른 자유도들과의 열적 평형에 이르게 하는 상호작용은 극저온으로 온도가 내려가면 그 크기가 줄어들어 열적 평형이 실제적으로 불가능하게 된다는 점이다. 특히 전자 온도의 경우 냉동기 구조물 및 전기 신호선을 따라 들어오는 고주파의 전기장에 의해서 전자들이 여기되서, 밀리켈빈에 도달한 격자온도보다 더 높을 수 있다. 그러므로 밀리켈빈에서 전자 분광법을 이용하기 위해서는 각종 고주파 방지 대책이 필요하게 된다. 주사터널 현미경의 터널 전류에 의한 전자 수송 분광 데이터에서 얻어지는 페르미-디랙 분포(Fermi-Dirac distribution) 함수 안의 온도를 데이터 맞춤으로 계산해내어 전자 온도를 구해내는 방식으로 전자 온도를 말할 수 있게 된다 [5].

3. 초고진공 1 켈빈 이하 고자기장 주사 터널 현미경

초고진공 1 켈빈 이하 고자기장 냉동기는 1 켈빈 단지 (1 K pot)안의 수십에서 수백 cc의 액체 헬륨-4의 증기압을 펌프로 뽑아내어 1.5 켈빈 정도의 온도를 만들어 내서, 기체 헬륨-3을 액화시킨 뒤 다시 그 액체 헬륨-3



[Fig. 3] Overall Schematic of our ultrahigh vacuum sub-Kelvin scanning tunneling microscope

의 증기압을 활성탄(activated charcoal) 펌프 같은 강력한 펌프로 뽑아내면, 0.25 켈빈까지 온도를 얻어낼 수 있다 [3]. 이러한 1 켈빈 이하의 냉동기는 고체 물리 실험 전공의 대학원생 한 사람의 노력으로 설계가 가능하다. 또한 본 저자들이 저온 주사터널 현미경의 제작 경험을 시작한 90년대와는 달리, 현재 국내에서도 전자 빔 용접, 고파워 펄스 레이저를 이용한 레이저 용접 등의 고성능 용접 기법이 손쉽게 지원받을 수 있으므로, 1 켈빈 이하 고자기장 냉동기의 제작은 국내 자체 제작이 가능하다. 이에 본 연구단에서도 연구단 고유 디자인 개념을 가진 1 켈빈 이하 7 테슬라 초전도 자석을 장착한 냉동기를 설계 및 제작 중이며, 그 완성을 목전에 두고 있다.

저자들의 개인적인 의견으로는 이러한 1 켈빈 이하 고자기장 냉동기가 매우 중요한데, 그 이유로는 1 켈빈 이하 냉동기를 기반으로 여러 가지 방향으로 확장이 가능하다는 점이다. 몇 가지 예를 들면, 첫째, 더 낮은 온도를 가능케 하는 냉동기의 제작을 위한 기초 플랫폼으로 응용이 가능하다. 예를 들어 단열 자기 소거(adiabatic demagnetization) 냉각 모듈을 탑재하면 희석식 냉동기의 밀리켈빈 온도 대역에도 도달 할 수 있을 것이다 [3].

둘째, 밀리켈빈 같은 극저온 온도대역이 아니기 때문에 주사터널 현미경에 기능을 더 추가하기가 용이하다는 점이다. 예를 들면 다음 섹션에서 논의 할, 광자 측정을

위한 광섬유 및 렌즈 등을 샘플 근처에 장착해도 그 온도대가 유지될 수 있어, 1 켈빈 이하 고자기장 주사터널 현미경으로 확장이 용이하다. 또한 역시 뒤에서 언급할 튜닝 포크 원자간 힘 현미경을 장착한 1 켈빈 이하 고자기장 주사터널 현미경으로의 확장도 가능하다. 이에 본 연구단에서는 초전도 자석 제작사에서 7 테슬라 초전도 자석 솔레노이드를 세 개를 구입하여 초고진공 1 켈빈 이하 7 테슬라 주사터널 현미경을 위한 냉동기의 추가 제작에 곧 들어갈 계획이다. 각각의 냉동기는 위에서 언급한 독특한 기능, 즉, 더 낮은 온도의 주사터널 현미경, 광자 주사터널 현미경, 튜닝 포크 원자간 힘 현미경의 기능을 각자 가지도록 할 계획이다.

그림 3은 본 연구단에서 제작중인 초고진공 1 켈빈 이하 고자기장 주사터널 현미경의 개요를 보여준다.

이러한 초고진공 1 켈빈 이하 고자기장 주사터널 현미경은, 가능한 실험 환경이 전자 스핀의 지만 분열보다 열적 동요가 크므로 각종 단일 전자 스핀의 검출과 조작에 강력한 도구이며 [5], 또한 위상 부도체와 같은 저온에서 신물질의 연구에 필수적인 도구중의 하나이다 [6].

4. 튜닝 포크 원자간 힘 현미경

2000년대 원자간 힘 현미경의 가장 인상적인 결과로는 튜닝 포크 원자간 힘 현미경의 실험 결과를 들 수 있다. 레이저 반사나 피에조 저항을 이용한 기존 기법의 해상도를 월등히 능가하는 튜닝 포크 타입의 원자간 힘 현미경은, 튜닝 포크에 외경 100 마이크로미터 또는 그 이하의 무게를 최소화한 얇은 금속 탐침을 부착한 형태를 이용하므로 원자간 힘과 터널 전류를 동시에 측정할 수 있다. 이에 현재 몇몇의 기존 상용 저온 주사터널 현미경에는 이러한 튜닝 포크 원자간 힘 현미경 옵션을 제공하여 그 응용 범위가 갈수록 넓어지고 있다. 참고문헌 7에 보이는 실험 결과는, 벤젠 고리가 일렬로 5 개 붙어있는 펜타센(pentacene) 단일 분자를 측정된 것으로, 전자 밀도를 주로 측정하는 주사터널 현미경 기능 외에 소위 화학적 힘(chemical force)를 통해서 원자간 결합의 이미지도 가능함을 보여주고 있다 [7]. 참고문헌 7에서 보듯이 탄소-수소 결합을 측정해 내어, 전자 밀도 함수 위주로 측정해내는 주사터널 현미경과 상보적인 실험 장치로 각광받고 있다. 더 나아가 고해상도로 측정시 탄

소-탄소간 단일 결합 및 이중 결합도 그 차이를 시각화시킬 수 있다. 또한 원자간 힘 현미경의 중요 고유기능인 부도체 표면도 측정이 가능하다는 측면에서 보면, 도체 표면만이 측정 가능한 주사터널 현미경의 약점을 보완해 줄 수 있어, 차세대 주사터널 현미경의 제 1 후보라고 말할 수 있겠다.

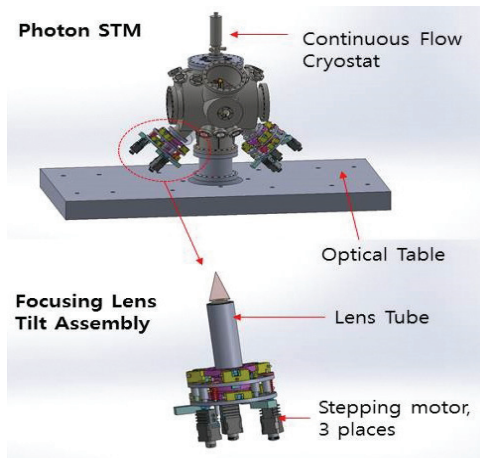
장치적인 측면에서 보면, 튜닝 포크 원자간 힘 현미경 기능을 기존 주사터널 현미경에 추가 탑재하려면, 탐침 샘플 정선에 가까이 위치하는 저온 전처리 전류 증폭기 (current preamplifier) 가 필요하며, 또한 초고진공 환경에서 탐침 부착되어 있는 3-전극 튜닝 포크 구조물을 용이하게 교환 할 수 있게 해야 한다. 이러한 기능들은, 저온을 유지 하기 위한 냉동기의 열적 기능에 영향이 그리 크지 않게 설계가 가능하므로, 기존 저온 주사 터널 현미경의 장치에 추가로 장착하기가 상대적으로 용이하다고 말할 수 있다. 현재 본 연구단에서는 4.2 켈빈 온도 하에서 저온 상태와 초고진공 상태를 유지한 채, 교체 가능한 근접 저온 전류 증폭기의 개발이 완료되었고, 현재 초고진공 환경에서 탐침/튜닝 포크 교체가 가능한 저온 주사 터널 현미경의 구상 단계에 있다.

5. 저온 광자 주사터널 현미경

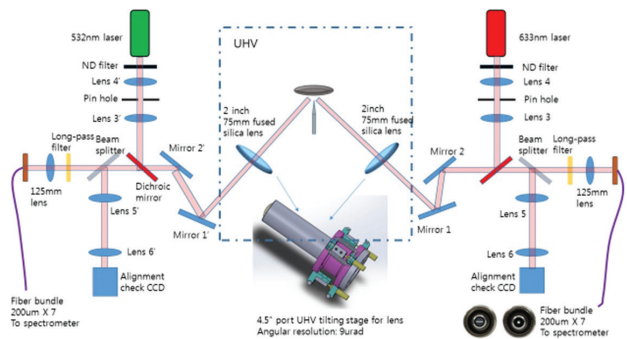
2014년의 노벨 화학상 수상 주제에서 보여주듯이 공간적 고해상도를 가지는 광학적 성질의 측정은 물리, 화학 및 재료 연구뿐만 아니라 생물학의 영역에서도 매우 중요하다. 이에 초고진공 주사터널 현미경 분야에서도 터널 정선에서 방출되는 광자의 세기 및 그 에너지 분석이 가능한 소위 광자 주사 터널 현미경이 90년대 초반부터 계속 개발되어 왔다.

광자 주사 터널 현미경을 이용하면, 터널 전자에 의한 전자 분광법보다 더 우수한 에너지 해상도를 상대적으로 저렴한 예산으로 얻을 수 있다. 예를 들어 4.2 켈빈에서 작동되는 저온 광자 주사 터널 현미경은 1 밀리 전자 볼트 이하의 에너지 해상도를 보여줄 수 있어서 초고진공 저온 주사터널 현미경 장비적 위치가 독특하다고 할 수 있다 [8].

또한 2000년대 각광받은 플라즈모닉스의 발전된 기법과 연동되어, 탐침/샘플 정선에서 증강된 표면 플라즈몬-폴라리톤(surface plasmon-polariton)을 이용하



[Fig. 4] Overall Schematic of our photon scanning tunneling microscope



[Fig. 5] Optical Detection Schematic of our photon scanning tunneling microscope

여 단일 분자의 진동에 의한 라만 시그널(Tip Enhanced Raman Spectroscopy)을 검출해 내는 응용 범위가 새로이 개척되었다 [9].

본 연구단에서는 그림 4에 보이듯이, 현재 6 켈빈 이하에서 작동하는 광자 주사 터널 현미경을 완성하였고, 현재 단일 분자의 라만 신호의 검출을 시도하고 있다 (그림 5). 또한 더 나아가 현재 자체 개발 중인 1 켈빈 이하 고자기장 주사터널 현미경에 광섬유를 이용하여 광자를 검출할 수 있는, 1 켈빈 이하 고자기장 광자 주사 터널현미경의 제작에 매진하고 있다.

6. 결론

저자들이 90년대에 저온 주사터널 현미경을 배워갈

때, 저온 주사터널 현미경의 실험 온도대가 수송 현상 연구 공동체의 수십 밀리켈빈 실험온도에 비하면 엄청 “뜨겁다”는 자조 섞인 농담을 저온 주사 터널 현미경 구성원들끼리 했던 기억이 난다. 이제 이십 년 동안 초고진공 저온 주사 터널 현미경은 두 세대가 지나, 현재 수송 현상 연구 공동체가 보여주는 현상을 보여줄 수 있는 단계에 들어왔을 뿐 아니라, 튜닝 포트 원자간 힘 현미경 및 광자 주사터널 현미경과 같은 차세대 기법이 1켈빈 이하 또는 밀리켈빈의 온도 대역과 고자기장 환경에 접목된다면, 더 다채로운 물리 및 화학 현상을 보여 줄 수 있을 것이 분명하다. 이에 초고진공 저온 주사 터널 현미경 연구자로서 자부심을 느낄 뿐만 아니라, 그 연구 영역을 넓혀야 한다는 책임감도 동시에 느끼고 있고, 앞으로 새로운 타입의 초고진공 저온 주사터널 현미경을 계속 제작해 나갈 계획이다. 본 원고에서는 언급하지 않았지만, 고효율 저진동 폐쇄형 냉동기 (closed cycle cryocooler)의 현재 개발 추세를 보면 [10], 2020년대에는 저온 주사터널 현미경이 보여주는 경계는 현재보다 더욱더 넓어질 수 있음이 분명하다. 이에 감히 예측하건대, 초고진공 저온 주사터널 현미경의 황금 시대는 앞으로 수십 년 또는 그 이상 유지될 것이다.

References

- [1] 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 (2011).
- [2] S. Misra, B. B. Zhou, I. K. Drozdov, J. Seo, L. Urban, A. Gyenis, S. C. J. Kingsley, H. Jones, and A. Yazdani, Rev. Sci. Instrum., **84**, 103903 (2013).
- [3] F. Pobell, Matter and Methods at Low Temperatures, 3rd edition, Springer, Berlin (2007).
- [4] R. Vincent, S. Klyatskaya, M. Ruben, W. Wernsdorfer, F. Balestro, Nature, **488**, 357 (2012).
- [5] A. J. Heinrich, J. A. Gupta, C. P. Lutz, and D. M. Eigler, Science, **306**, 466 (2004).
- [6] C. Z. Chang, J. S. Zhang, X. Feng, J. Shen, Z. C. Zhang, M. H. Guo, K. Li, Y. B. Ou, P. Wei, L. L. Wang, Z. Q. Ji, Y. Feng, S. H. Ji, X. Chen, J. F. Jia, X. Dai, Z. Fang, S. C. Zhang, K. He, Y. Y. Wang, L. Lu, X. C. Ma and Q. K. Xue, Science **340**, 167 (2013).
- [7] L. Gross, F. Mohn, N. Moll, P. Liljeroth, G. Meyer, Science, **325**, 1110 (2009).
- [8] C. Chen, P. Chu, C. A. Bobisch, D. Mills and W. Ho, Phys. Rev. Lett., **105**, 217402 (2010).
- [9] R. Zhang, Y. Zhang, Z. C. Dong, S. Jiang, C. Zhang, L. G. Chen, L. Zhang, Y. Liao, J. Aizpurua, Y. Luo, J. L. Yang, and J. G. Hou, Nature, **498**, 82 (2013).
- [10] S. Zhang, D. Huang, S. Wu, Rev. Sci. Instrum., **87**, 063701 (2016).