

서울대학교 초고속 양자 포토닉스 연구실

서울대학교 물리천문학부 최현용



그림 1. 서울대학교 초고속 포토닉스 연구실의 구성원과 실험실.

1. 들어가며

고전적 고체물리학의 틀을 벗어나면 양자역학적 현상이 두드러지게 나타난다. 기존 고전 고체물리학적 관점, 즉 static한 현상 외에 강력한 쿨롱힘에 의한 수많은 전자와 격자, 그리고 빛의 상호작용이 중요한 역할을 하게 된다. 이러한 빛과 물질의 상호작용 현상은 매우 빠른 시간 내에서(수 펨토초, 10^{-15} second 에서 수십 피코초, 10^{-12} second) 일어나는데, 만일 물질 내에 돌아다니는 입자가 페르미 액체로 기술되면 운동과 위치 에너지 사이에서 초고속 동역학 변화가 일어난다^[1]. 이때 물질의 집단 거동 현상 또한 중요한 상호작용의 매개체 역할을 하며, 이에 해당하는 에너지 스케일은 수 meV에서 수 eV로 매우 광범위한 영역을 차지한다^[2].

따라서 시간에 따라 변화하는 빛과 물질의 상호작용을 정확하게 이해하기 위해서는 펨토초 스케일의 시간 분해능과 광대역 에너지 대역의 분해능이 동시에 요구된다. 일례로, 밴드갭이 있는 물질의 경우 띠간 전이(interband transition)의 연구를 통해 전자와 정공

플라즈마, 그리고 전자-정공의 강상관계 특성을 갖고 있는 엑시톤(exciton)에 대한 지식을 얻을 수 있고 이를 바탕으로 초고속 광펄스 여기서 물질 내에서 일어나는 다양한 초고속 동역학에 대한 근원적인 물리적 이해가 가능하다^[3]. 한편, 낮은 에너지 스케일에서의 빛-물질 상호작용 현상은 띠내 전이(intraband transition)에 대한 정보를 제공하는데, 이는 기존 선형적인 특성을 갖는 광반응에 더해 두드러진 양자역학적 효과들(예를 들어 초전도체의 쿠퍼 페어 동역학, 위상 물질의 스핀 동역학, 준입자와 전자가 결합된 새로운 입자)를 연구할 수 있다. 이러한 초고속 레이저 펄스를 이용한 시간 및 에너지 분해 동역학 연구를 위해서는 펄스당 에너지가 μ J 이상의 초강력 레이저 펄스가 이상적인 실험적인 도구이다^[4].

서울대학교의 초고속 양자 포토닉스 연구실에서는(그림 1) 펄스당 μ J 그리고 mJ 이상을 발생시킬 수 있는 초고속 레이저 증폭기를 다수 보유하여 물질에서 일어나는 초고속 물질 물리학 현상을 이해하고자 하는 연구 목표를 갖고 있다(표 1).

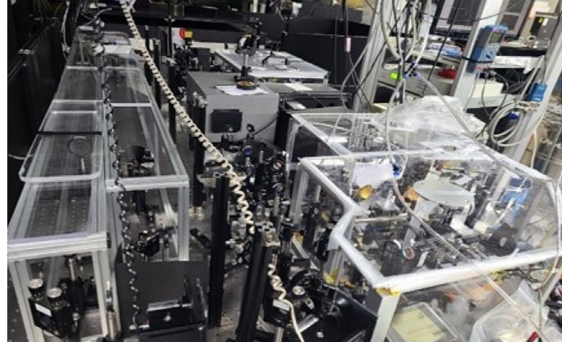
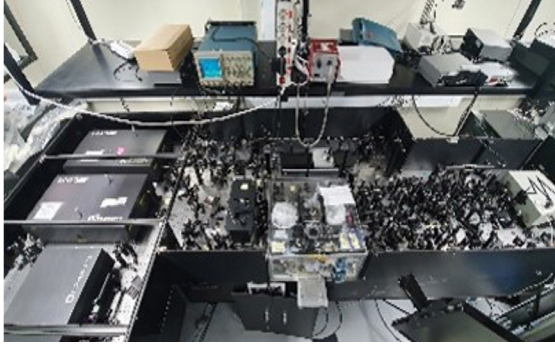


그림 2. 서울대학교 초고속 포토닉스 연구실의 펨토초 레이저 증폭기. (좌): 250 kHz regenerative amplifier를 이용한 초고속 펌프-프로브 셋업. (우): 1 kHz regenerative amplifier를 이용한 high-power 초고속 분광학 셋업

표 1. 250 kHz regenerative amplifier과 1 kHz regenerative amplifier의 비교.

250 kHz Regenerative Amplifier		1 kHz Regenerative Amplifier	
Pulse width	≈50 fs at 800 nm	Pulse width	≈30 fs at 800 nm
Pulse energy	≈6 μJ	Pulse energy	≈7 mJ
OPA	Visible 영역으로의 파장 변환을 위한 경우: 460 nm ~ 700 nm	TOPAS	Visible 영역으로의 파장 변환을 위한 경우: 400 nm ~ 720 nm
	Infrared 영역으로의 파장 변환을 위한 경우 (1.1 μm ~ 2.5 μm)		Infrared 영역으로의 파장 변환을 위한 경우 (0.9 μm ~ 2.8 μm)
Terahertz (THz) 영역으로의 파장 변환을 위한 home built THz 분광기술	0.3 ~ 20 THz	Strong THz 전자기파 (~ 1 MV/cm) 발생 가능한 home built THz 기술	0.3 ~ 5 THz

그림 2는 실제 실험실 사진을 보여주고 있다. 다소 복잡한 실험 셋업이지만, 이를 간략히 설명하면 다음과 같다. 증폭된 펨토초 펄스(대략 50 펨토초 펄스폭)를 2개의 광경로로 분리하여 하나는 샘플을 순간적으로 여기하는 ‘펌프(pump) 펄스’로 쓰고, 다른 하나의 광경로는 펌프 펄스와 시간 경로차를 조절하여 샘플에 입사하는 ‘프로브(probe) 펄스’로 쓴다. 펌프 펄스의 파장은 연구하고자 하는 샘플의 종류에 따라 다르므로 이상적으로는 meV 에서 eV 에너지 스케일의 다양한 에너지를 갖는 펨토초 펄스가 필요하다. 프로브 펄스 또한 샘플 내에 관심 있는 에너지 영역에 따라 파장이 다르므로 역시 이상적으로는 meV에서 eV 스케일의 광대역 펨토초 프로브 펄스가 필요하다⁵⁾. 본 연구실에서는 이러한 ‘펌프-프로브 분광학’ 기술을 적용하여 다양한 샘플에 대한 연구를 진행하고 있는데, 크게 250 kHz와 1 kHz 레이저 증폭 시스템을 이용해 다양한 펌프-프로브 분광학 연구를 수행하고 있다.

특히 본 연구실은 지난 10여 년 동안 가시광선-적외선 영역뿐만

아니라 테라헤르츠(terahertz, THz) 기술에 특화된 많은 연구 노후를 축적하고 있는데, THz 스펙트럼의 주파수와 파장은 대략적으로 1 THz = 1,000 GHz 와 1 THz ≈ 4.136 meV이다. 기존의 고전적인 마이크로웨이브 전자공학에서는 높은 주파수로의 전환에 한계가 있고, eV 영역의 광학에서 낮은 에너지로의 전환 또한 기술적인 문제가 있기 때문에 이른바 “THz gap”이라 불리는 영역이다. 테라헤르츠 광학 기술은 이러한 이유로 전 세계적으로 극소수의 연구그룹만이 수행가능한 고난이도 연구 분야이다. 아이러니하게도 이러한 영역에서 고체물질 내의 다양한 집단 거동들, 예를 들어 플라즈몬, 폴라론, 엑시톤 내부 전이, 초전도 갭, 스핀 회전 등과 관련된 새로운 물리적 현상들이 발현되기 때문에 광학뿐만 아니라 고체물리학을 연구하는 많은 연구진들이 관심을 갖는 영역이기도 하다.

2.1. 서울대학교 초고속 포토닉스 연구실의 연구 분야

본 연구실에서 지향하는 큰 연구 주제는, 고체물질에서의 공간적인

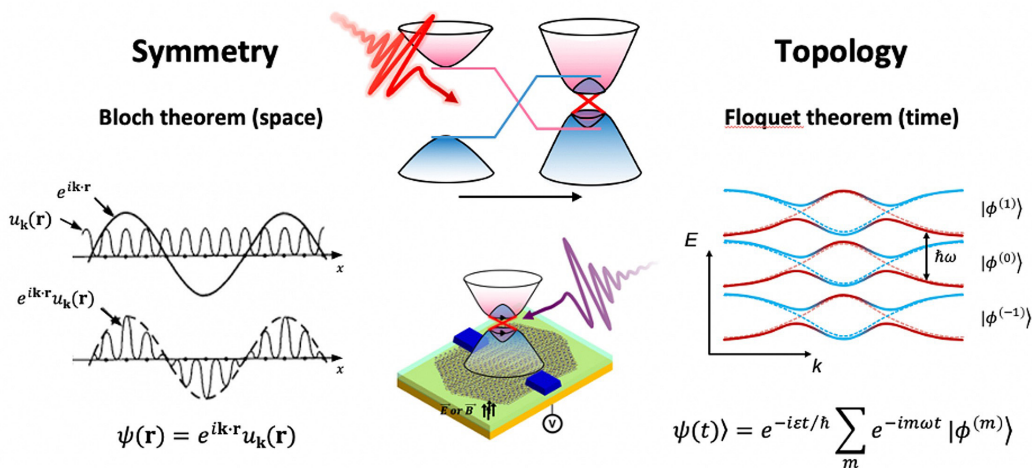


그림 3. 초고속 광여기를 통한 고체물질에서의 대칭성 붕괴와 위상상태 변화 모식도.

대칭성 붕괴(symmetry breaking)과 위상상태 변화(topological phase transition) 현상을 초고속 레이저 펄스로 여기하고(excitation) 조절하는(control) 문제에 관심을 두고 있다 (그림 3). 이러한 현상을 연구하기 위해 앞서 설명한 다양한 파장영역의 초고속 레이저 펄스를 이용해 시간-공간-에너지 분해 연구를 진행하고 있다.

2.2.1 2차원 반데르발스 물질 광제어 엑시톤 토폴로지

밴드갭이 존재하는 물질에 빛이 흡수되며 일어나는 현상 중, 가장 근원적인 예시는 전자-정공이 쿨롱힘에 의해 쌍을 이루는 엑시톤이다(exciton). 엑시톤과 다른 입자들이 상호작용하는 동역학 토폴로지는 현대 2차원 물질 물리학의 중심 키워드이다. 이차원 전이금속 디칼코게나이드(transition metal dichalcogenide, TMD) 반데르발스와 이를 뒤뜰린 각도로 쌓아 형성된 moiré 초격자는 엑시톤과의 상관 관계를 빛으로 쉽게 변조 가능한 새로운 플랫폼을 제공한다. 뒤뜰린 각도를 조절하면 물질의 공간적 대칭성을 자유롭게 조절할 수 있고, 이를 통해 전자 띠의 위상학적 상태를 조절할 수 있다.

이러한 현상은 결국 광여기에 의해 나타나는 엑시톤 동역학에 영향을 주게 되며, 엑시톤끼리의 결맞은 상호작용을 관측하기에 용이하다. 예를 들어 단일 TMD에 빛에 의해 형성된 엑시톤들은 서로 위상이 결맞은 상호작용을 하게 되고, 이러한 현상은 양자역학으로 풀어보면 엑시톤 quantum beat으로 발현될 것이라고 예측할 수 있다.

그림 4는 본 연구진이 수행한 2차원 물질의 비등방적인 엑시톤들의 초고속 quantum beats 현상을 선형 편광 레이저 펄스를 이용하여 관측하는데 처음으로 성공한 사례를 나타낸 연구 결과이다. [6,7].

본 연구진은 향후 연구 목표로 뒤뜰린 각도로 적층된 반데르발스 moiré superlattice에서의 엑시톤 준입자 토폴로지와 Floquet 엔지니어링 물리학 연구를 수행할 예정이다. Floquet 엔지니어링 물리학은 물질이 흡수할 수 있는 광에너지보다 낮은 에너지의 빛이 일정한 주기를 갖고 여기되었을 때 나타나는 양자 효과인데, 특히 빛의 세기가 매우 크고 펄스 폭이 짧을수록 잘 발현되는 현상이다. 이를 위해 첫째, 엑시톤-폴라론 Floquet 준입자 관측을 수행할 예정인데, 전기적으로 도핑이 조절된 TMD에 광여기 시 발생하는 엑시톤은 주변의 Fermi sea와 상호작용하여 페르미 폴라론을 형성하고, 이를 광-

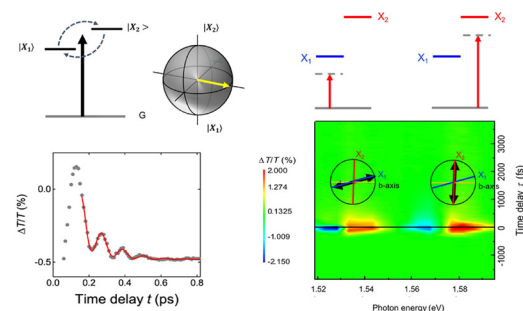


그림 4. 이차원 물질에서의 초고속 엑시톤 quantum beats를 최초로 관측한 사례.

스타크 효과(optical Stark effect), Bloch Siegert effect^[8]와 같은 초고속 Floquet 엔지니어링을 이용해 엑시톤 다체 특성을 파악하는데 목표를 두고 있다. 두번째, Stark/Bloch-Siegert 밴드 토폴로지 제어를 수행할 예정이다. 이중층 뒤틀린 격자 대칭 moiré superlattice를 만들면 특정 각도와 전기장의 세기에 따라 평평한 밴드의 토폴로지가 발현된다. 이때 Floquet 엔지니어링을 통해 밴드 토폴로지를 순간적으로 제어할 수 있으며, 이러한 현상은 기존 전기적인 방법 혹은 steady-state 광학으로 측정 불가능한 새로운 물질의 상(phase)를 발견할 수 있을 것으로 기대한다.

2.2.2 바일 준금속의 대칭성 붕괴를 이용한 고차원 토폴로지 제어

본 연구진은 지난 수년간 3차원 위상절연체뿐만 아니라, 양자 스핀 홀 효과를 나타내는 2차원 WTe₂ 물질에 주목하고 있다. WTe₂ 물질은 비등방성을 나타내는 type-II 준금속으로 원자두께 수준으로 얇아졌을 때 단일층에서 양자 스핀 홀 절연체, 다중층 구조에서는 바일 준금속 상(phase)을 나타낸다^[9]. 본 연구진은 단일층 WTe₂ 물질과 단일층 TMD 물질의 이중접합 소자를 제작하여 광 여기 시 전자 스핀과 밸리 특성의 상호 변환될 수 있음을 실험적으로 관측하였다(그림 5)^[10].

또한 최근의 연구 결과로는 다중층 WTe₂ 물질에서 이론적으로만 알려진 스핀이 가득찬 전자 수송 실험이 있다. 이 결과 기존 밴드 토폴로지

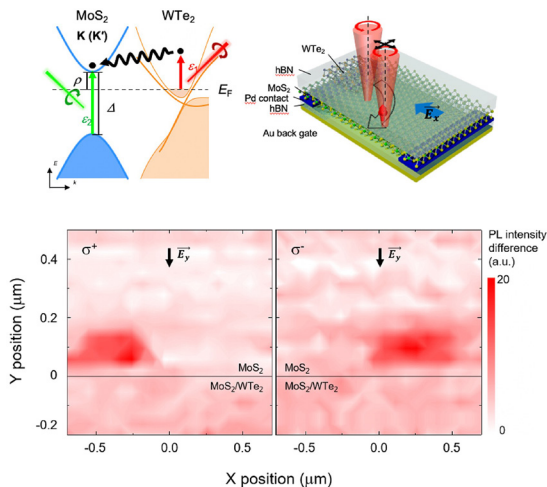


그림 5. MoS₂-WTe₂ 이중접합소자를 이용한 전자스핀-밸리 변환 실험 결과.

폴로지 구현에 필요한 밴드역전이 한번 더 일어난 고차원 토폴로지 현상을 관측하였다. 사실 이와 비슷한 이론 및 실험 결과들은 1차원 전기 전도도 측정에 국한되어 전자의 스핀 정보를 정확히 알아내기 어려웠다^[11]. 본 연구진은 WTe₂ 에서 자기광학 Kerr 효과를 최초로 관측하였고 전자 스핀의 특성 분포를 정확히 연구할 수 있었고, 전기장 및 자기장 의존도에 따른 전자 스핀의 변화 양상을 살펴봄으로써 보다 고차원 토폴로지 전자 특성을 재차 검증할 수 있었다.

이에 대한 향후 연구 계획으로는 WTe₂ 단일층의 뒤틀린 적층과 다중층 WTe₂에 1 MV/cm 이상의 강력한 high-field THz 여기를 통해 위상학적 상태를 제어하고, 그 특성을 이용해 광학적 시간분해 측정과 전기적 수송특성 실험을 진행하고자 한다. 이를 통해 뒤틀린 이중층에서 나타나는 moiré 밴드의 위상학적 상태를 분석하고, THz 펄스를 이용한 제어가 가능하리라 기대한다.

또한 뒤틀린 이중층 WTe₂ moiré 밴드 및 광-유도 전자 준위에 대한 연구를 진행하였던 것에서 더 나아가, 뒤틀린 적층에 의해 형성된 moiré 밴드와 광 여기에 의해 발생한 Floquet 준입자 상태에서 예상되는 고차 위상절연체 상태의 존재를 입증하고자 한다. 본 연구의 물리적 근거인 물질 결정 격자의 위상학적 상태는 해당 시스템이 가지는 대칭성과 직접적으로 연관되어 있기 때문에, 현재까지 알려진 측정방법인 circular photogalvanic effect 측정에 더해 THz 펄스 여기에 의한 대칭성 변화를 효과적으로 입증할 수 있는 이차원조화파(second harmonic generation, SHG) 실험 방식을 도입하고자 한다.

여기에 더해 시간-분해 광학 측정(Kerr rotation, SHG 등)과 더불어 RF 전기 신호를 이용한 시간 및 위상-분해 전자 수송 특성 측정을 수행하여 nonlinear anomalous Hall effect와 같은 전기적 측정을 수행하고자 한다(그림 6).

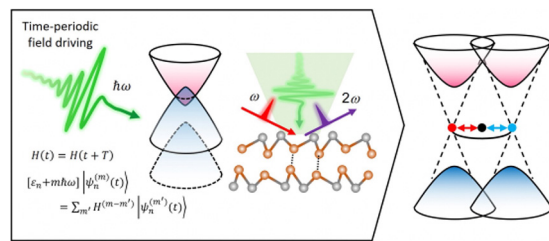


그림 6. High-field THz 여기와 WTe₂ 바일 준금속 대칭성 붕괴 측정을 위한 2차 비선형시간분해 측정 모식도.

2.2.3 다이아몬드 및 hBN에서의 다중 큐비트 양자정보 레지스트리 및 홀로노믹 게이트

본 연구진은 최근 다이아몬드 NV 센터 전자 스핀의 양자 상태를 측정할 수 있는 양자정보 측정 시스템을 구축하였다. 고진공 고자기장 하에서 양자 광학 연구가 가능한 공초점 현미경을 펄스 레이저 현미경 시스템과 결합하여 상온 또는 저온 조건에서 선택적으로 실험을 할 수 있도록 구축하였고, 장시간 안정적인 단일 NV 센터 형광량 측정을 위해 스캐닝 거울과 대물렌즈를 이용한 자동화 트래킹 시스템을 구축하였다. 1 kHz 반복률 기반의 고출력 펄스 증폭기를 이용해 공동(defect)을 생성시켜 최종적으로 NV 센터를 의도한 위치에 생성시키는 펄스 레이저 공동 생성 시스템을 셋업하였고 [12], NV 센터의 광학 및 스핀특성을 공초점 현미경 시스템에서 확인하였다. 또한 2차원 물질 hBN을 이용하여 구면수차 보정 패턴과 단일 펄스 레이저 펄스의 조사를 이용해 hBN에서도 결합이 생성됨을 확인하였고, 광-스펙트럼 측정과 전자 스핀 공명 스펙트럼 측정을 통해 생성된 것이 최근 활발히 연구되고 있는 보론-공동 센터(VB-)임을 확인하였다.

본 연구는 초고속 레이저를 이용한 deterministic 다중 큐비트 양자 정보 레지스트리를 국내 최초로 실험적으로 구현한 사례에 해당

하며 기존 헬륨, 전자빔 조사를 통해 생성된 결합기반 큐비트와 동등한 특성을 나타내는 성과를 보였다 (그림 7).

양자정보 실험분야는 최근 세계적으로 가장 주목받고 있는 분야 중 하나임이 분명하다 [13]. 고충실도 다중 큐비트를 만드는 것은 실용적 스케일의 양자 컴퓨터의 기반을 만드는 역할을 하므로, 본 연구실에서는 고전 컴퓨터가 수행할 수 없는 초전도체 해밀토니안 시뮬레이션, 고충실도 양자 게이트 구현을 향후 목표로 설정하고 있다.

특히 고충실도 홀로노믹 게이트는 상온 동작, 저노이즈 측면에서 양자 전산/시뮬레이션이 가능한 양자 우위급 양자 컴퓨터의 개발에 크게 기여하며 양자 컴퓨팅, 양자 암호화 등의 분야 발전에 크게 영향을 줄 것으로 기대된다. 기존에 존재하는 동적 게이트(dynamic gate)는 532 nm 파장의 레이저와 마이크로파 펄스를 이용해 스핀을 조정하는 데 반해, 본 연구진의 주제인 홀로노믹 게이트(holonomic gate)는 레이저와 두 개의 마이크로파 펄스를 사용하여 밝은 상태(bright state)와 바닥 상태(ground state)로 이루어진 Bloch 구 상의 순수 기하학적 위상(geometric phase) 전이를 일으킴으로써 동적 위상을 상쇄시켜 컨트롤 오류에 둔감한 게이트 동작을 가능하게 할 것으로 기대한다.

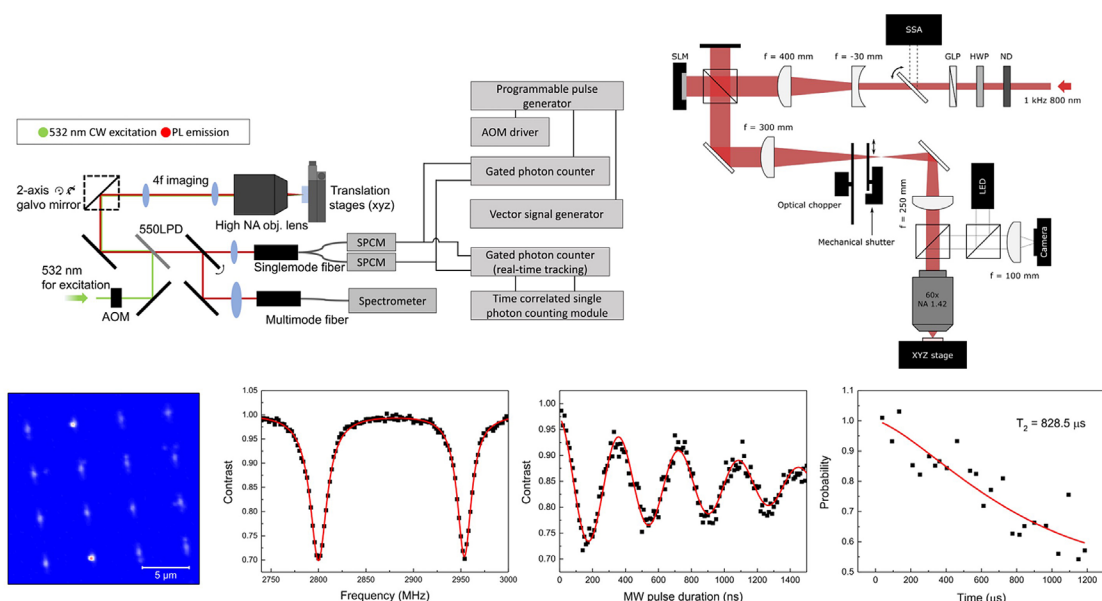


그림 7. (위) 초고속 레이저를 이용한 다이아몬드 NV 센터와 hBN에서의 보론-공동 센터 (VB-) 생성을 위한 실험 모식도들, (아래) 제일 왼쪽: 보론-공동 센터 (VB-), 아래 오른쪽: 단일 NV 센터에서 측정된 전자공명, 라비 진동, 스핀-에코 측정 결과들.

3. 마치며

서울대학교 초고속 포토닉스 연구실은 초고속 레이저 광학과 최근 주목받고 있는 저차원 전이금속 디칼코게나이드 물질군, 위상바 일물질, 그리고 다이아몬드 및 hBN 연구의 융합으로 구성되어 있다. 상기 분야는 최근 광학 및 고체물리학 분야의 최전선으로, 학문적 의미성 외에도 빛과 물질의 초고속 물성 물리학을 정확하게 이해할 수 있는 새로운 방법이라는 특징을 가지고 있다. 또한 본 연구실에서는 기존에 수행된 전자수송 및 static 광학 측정을 벗어나 초고속 레이저를 기반으로 새로운 고체물성을 탐색하고 있다.

본 연구실의 장점은 실험에 필요한 소자를 직접 실험실 내에서 제작하고, 이를 바탕으로 기본적인 전기적 수송측정과 광학 연구를 동시에 수행할 수 있다는 점에 있다. 이를 위해 고진공(~10⁻⁷ torr), 극저온(~1.6 K), 고자기장(~9 T)하에서 연구를 수행할 수 있는 실험 제반 시스템을 갖추어 학생들 자체적으로 높은 수준의 고체물리, 광학, 소자물리에 대한 지식 습득이 가능하다.

초고속 포토닉스 연구실의 연구 결과가 광학과 고체물리학 발전에 기여할 수 있길 바라고, 본 연구실이 꾸준히 정진할 수 있도록 많은 격려를 부탁드립니다. 글을 마칩니다.

참고문헌

[1] D. S. Chemla and J. Shah, "Ultrafast dynamics of many-body processes and fundamental quantum mechanical phenomena in semiconductors," *Proc. Natl. Acad. Sci.* **97**, 2437-2444 (2000).
 [2] R. Ulbricht, E. Hendry, J. Shan, T. F. Heinz, and M. Bonn, "Carrier dynamics in semiconductors studied with time-resolved terahertz spectroscopy," *Rev. Mod. Phys.* **83**, 543-586 (2011).
 [3] T. Elsaesser and M. Woerner, "Femtosecond infrared spectroscopy of semiconductors and semiconductor nanostructures," *Phys. Rep.* **321**, 253-305 (1999).
 [4] P. Gaal, W. Kuehn, K. Reimann, M. Woerner, T. Elsaesser, and R. Hey, "Internal motions of a quasiparticle governing its ultrafast nonlinear response," *Nature* **450**, 1210-1213 (2007).
 [5] R. Huber, F. Tauser, A. Brodschelm, M. Bichler, G. Abstreiter, and A. Leitenstorfer, "How many-particle interactions develop after ultrafast excitation of an electron-hole plasma," *Nature*

414, 286-289 (2001).

[6] S. Sim, D. Lee, A. V. Trifonov, T. Kim, S. Cha, J. H. Sung, S. Cho, W. Shim, M.-H. Jo, and H. Choi, "Ultrafast quantum beats of anisotropic excitons in atomically thin ReS₂," *Nat. Commun.* **9**, 351 (2018).
 [7] S. Sim, D. Lee, J. Lee, H. Bae, M. Noh, S. Cha, M.-H. Jo, K. Lee, and H. Choi, "Light polarization-controlled conversion of ultrafast coherent-incoherent exciton dynamics in few-layer ReS₂," *Nano Lett.* **19**, 7464-7469 (2019).
 [8] C. Bao, P. Tang, D. Sun, and S. Zhou, "Light-induced emergent phenomena in 2D materials and topological materials," *Nat. Rev. Phys.* **4**, 33-48 (2022).
 [9] Q. Ma, S.-Y. Xu, H. Shen, D. MacNeill, V. Fatemi, T.-R. Chang, A. M. M. Valdivia, S. Wu, Z. Du, C.-H. Hsu, S. Fang, Q. D. Gibson, K. Watanabe, T. Taniguchi, R. J. Cava, E. Kaxiras, H.-Z. Lu, H. Lin, L. Fu, N. Gedik, and P. Jarillo-Herrero, "Observation of the nonlinear Hall effect under time-reversal-symmetric conditions," *Nature* **565**, 337-342 (2019).
 [10] J. Lee, W. Heo, M. Cha, K. Watanabe, T. Taniguchi, J. Kim, S. Cha, D. Kim, M.-H. Jo, and H. Choi, "Ultrafast non-excitonic valley Hall effect in MoS₂/WTe₂ heterobilayers," *Nat. Commun.* **12**, 1635 (2021).
 [11] N. P. Ong and S. Liang, "Experimental signatures of the chiral anomaly in Dirac-Weyl semimetals," *Nat. Rev. Phys.* **3**, 394-404 (2021).
 [12] Y.-C. Chen, P. S. Salter, S. Knauer, L. Weng, A. C. Frangeskou, C. J. Stephen, S. N. Ishmael, P. R. Dolan, S. Johnson, B. L. Green, G. W. Morley, M. E. Newton, J. G. Rarity, M. J. Booth, and J. M. Smith, "Laser writing of coherent colour centres in diamond," *Nat. Photonics* **11**, 77-80 (2017).
 [13] Z.-Q. Xu, M. Toth, and I. Aharonovich, "Quantum emitters in 2D materials: Emitter engineering, photophysics, and integration in photonic nanostructures," *App. Phys. Rev.* **9**, 011306 (2022). -K