

**Grafén tulajdonságainak hangolása atomi szerkezetének
nanométeres léptékű módosításával**

MTA doktori értekezés tézisei

Tapasztó Levente

Energiatudományi Kutatóközpont
Műszaki Fizikai és Anyagtudományi Intézet

Budapest

2021

A kutatások előzményei

Tizenöt év távlatából már bizonyossággal állítható, hogy a grafén felfedezése új fejezetet nyitott a modern anyag- és nano- tudományokban. Mára az is teljesen világossá vált, hogy az egyetlen atomi réteg vastag kristálysíkok önálló formában való létezése és újszerű tulajdonságai nem csupán egyetlen anyag, a grafén sajátosságai. Szerkezeti adatbázisok számítógépes elemzésével több, mint ezer olyan kristályt azonosítottak, amelyek a rétegek egyszerű mechanikai szétválasztásával, jó eséllyel előállíthatók egyetlen elemi cella vastag formában. Az így kapott anyagokat gyűjtőnéven kétdimenziós (2D) kristályoknak nevezzük. Bár a 2D kristályok családja az utóbbi években rohamosan bővül, és a szerző maga is aktívan kutat a grafénon kívül más 2D anyagokat is, a jelen értekezés kizárólag a grafénra fókuszál. A szerző, mindössze néhány évvel a grafén felfedezése után kezdett el aktívan foglalkozni a grafén kutatásával, még évekkel a felfedezéséért odaítélt Nobel-díj előtt. Ez volt a PhD megszerzése utáni első önálló kutatási témája, amelyet egy akkori TDK-s diákjával, későbbi munkatársával, Dobrik Gergellyel kezdett el közösen kutatni.

Az egyedi elektronszerkezetéből adódó új jelenségeken túl a grafén anyagi tulajdonságai is kiemelkedők. A szén-szén kötések erőssége páratlan mechanikai stabilitással ruhazza fel, míg speciális sáv szerkezete folytán a töltéshordozók visszaszórása szimmetria által tiltott, így azok mozgékonyága szobahőmérsékleten is kiemelkedően magas. A kutatások első fázisában a grafén intrinszik tulajdonságait térképezték fel, szinte hetente jelentek meg újabb és újabb szenzációs eredmények. Ahogy az ilyenkor lenni szokott, még az eredményeknél is gyorsabban ütemben nőttek az elvárások a grafén lehetséges alkalmazásaival kapcsolatban. Így az is gyorsan nyilvánvalóvá vált, hogy eredeti formájában a grafén sem használható minden megálmodott alkalmazáshoz. A töltéshordozók rendkívül magas mozgékonyága miatt az elektronikai alkalmazási lehetőségek rögtön a figyelem középpontjába kerültek. Ám az adatfeldolgozásra elterjedten használt digitális elektronika félvezető anyagokra épül, a grafén sáv szerkezete eredeti formájában pedig nem rendelkezik tiltott sávval. Ebből adódóan a grafén atomi és elektronszerkezetének célzott módosítására fókuszáló kutatások is viszonylag gyorsan felfutottak. Míg az első időszakra az volt a jellemző, hogy a grafént minél tisztább, tökéletesebb formában próbálták előállítani és vizsgálni, ezzel párhuzamosan egyre nagyobb hangsúlyt kaptak a szerkezet és a tulajdonságok célzott módosítására irányuló kutatások is. Jelen értekezésnek is a grafén szerkezetének nanométeres skálán történő módosítása áll a középpontjában, két jól elkülönülő stratégiát követve. Egyrészt grafén nanoszalagok

létrehozása és tulajdonságaik vizsgálata révén, másrészt a grafén atomi szerkezetének síkra merőleges, nanoskálájú modulációjával (deformációjával). Az első esetben a grafén szerkezetének folytonosságát élekkel megszakítjuk, míg a másik esetben, az anyag folytonosságának megtartása mellett, annak kötéseit lokálisan deformáljuk. Grafén nanoszalagok esetében a legfőbb motivációt az jelentette, hogy elméleti számítások alapján ezek elektronszerkezete tág határok között hangolható a szalagok szerkezetének szabályozásával. Alapvetően két szerkezeti paraméter, a szalagok szélessége és éleik kristálytani irányai határozzák meg a szalagok elektronszerkezetét és tulajdonságait. Két magas szimmetriájú élorientációt különböztetünk meg, a karosszék- és cikcakk-éleket. Karosszék-élek esetében az elméleti jóslatok alapján a szalag szélességével fordítottan arányos szélességű, a digitális elektronikai eszközök szempontjából alapvető fontosságú tiltott sáv alakítható ki. Cikcakk-élű szalagok esetében egy sokkal összetettebb viselkedést jósoltak, ennek egyik legérdekesebb megnyilvánulása a szalag éleinek mágnessége a cikcakk-éleken található párosítatlan spinek rendeződésének következtében. A nagy kihívást ezen érdekes és potenciálisan hasznos tulajdonságok megvalósításában az jelentette, hogy a szalagok tulajdonságainak tervezett kialakításához az élorientációt és a szalagok szélességét közel atomi pontossággal kell szabályozni. Az elterjedten használt nanomegmunkálási (nanolitográfiás) eljárások ezeknek az elvárásoknak nem tudtak megfelelni, így új eljárások kidolgozására volt szükség, hogy a grafén nanoszalagok atomi és elektronszerkezete közötti összefüggéseket kísérletileg feltárjuk és megvalósíthassuk a tulajdonságok célzott hangolását.

Az értekezésben alkalmazott másik megközelítés esetében a grafén azon tulajdonságát használtuk ki, hogy a tömbi anyagokkal ellentétben rendelkezik egy többlet szabadsági fokkal, ugyanis atomi szerkezete viszonylag könnyen relaxálódhat (kihajolhat, gyűrődhet) a síkjára merőleges irányban. Ezek a síkra merőleges deformációk jelentősen befolyásolják a grafén elektronszerkezetét. Ennek egyik leggyakrabban észlelt formája a kristályos felületeken elhelyezett grafénban kialakuló periodikus moduláció, vagy moiré-mintázat, amely a rácsállandók közötti eltérés és/vagy a rácsok egymáshoz viszonyított elforgatása következtében jelenik meg. Ezt a grafén rácsállandójánál nagyobb hullámhosszú, periodikus modulációt szuperrácsnak nevezzük. Mára az is világossá vált, hogy bizonyos grafén szuperrácsokban különleges, korrelált elektronrendszerek alakulnak ki, amelyek például szupravezető vagy mágneses tulajdonságokat mutatnak. Éppen ezért a grafén szuperrácsok kialakulásának, típusainak és tulajdonságainak részletes vizsgálata egyre nagyobb jelentőséget nyer. Hasonlóan érdekesnek bizonyultak a nem periodikus, de különösen erős (nagy aspektusarányú) nanoskálájú gyűrődések, amelyek lehetővé teszik a töltéshordozók élek nélküli bezárását.

Célkitűzések

- Olyan nagy pontosságú nanomegmunkálási eljárás kidolgozása 10 nm alatti szélességű grafén nanoszalagok létrehozására, amely képes az élek kristálytani irányát szabályozni és a szalagok szélességét nanométeres pontossággal kialakítani. Egy ilyen módszertől azt várjuk, hogy lehetővé tegye a grafén nanoszalagok atomi szerkezete és elektronszerkezete közötti összefüggések szisztematikus kísérleti feltárását.
- Félvezető grafén nanoszalagok kialakítása és tiltott sávjának tervezett hangolása a szalagok szélességének változtatásával.
- Cikcakk-élű grafén nanoszalagok sávszerkezetének kísérleti vizsgálata, különös tekintettel az élmágnesség kialakulására utaló jelenségek vizsgálatára.
- Olyan grafén nanoszalagokra épülő elektronikai eszköz-konceptió kidolgozása, amely kihasználja a grafén nanoszalagok sajátos elektronszerkezetét gyorsabb működésű és kisebb fogyasztású elektronikai és spintronikai eszközök tervezésében.
- Grafén nanoszerkezetekre épülő elektronikai eszköz létrehozása és transzport-tulajdonságainak vizsgálata, valamint a kvantumozott működési elv demonstrálása.
- Grafénban kialakuló moiré-szuperrácsok morfológiájának feltárása a rétegek közötti elforgatási szög és a rétegek síkjában fellépő mechanikai feszültség függvényében. Különböző morfológiájú grafén szuperrácsok kísérleti megfigyelése és elméleti értelmezése.
- Egydimenziós grafén szuperrácsok létrehozása felfüggesztett grafén nanomembránokban. A rácsállandóval összemérhető hullámhosszú szerkezeti deformációk vizsgálata. Az egydimenziós szuperrács által a grafén elektronszerkezetére gyakorolt hatás vizsgálata.
- Extrém mértékű nanokorrugáció (nanoskálájú gyűrődés) létrehozása grafén szerkezetében és hatásának vizsgálata a grafén elektronszerkezetére és optikai tulajdonságaira.

Kísérleti módszerek

Az értekezésben foglalt eredmények elérésében elsősorban pásztázó alagútmikroszkópiát (STM) alkalmaztam. Egyrészt a grafén nanoszalagok előállításra kidolgoztam egy olyan új nanomegmunkálási eljárást, amely a pásztázó alagútmikroszkópra épül (STM-litográfia) és az STM azon ritkán használt tulajdonságát aknázza ki, hogy nemcsak a vezető felületek atomi felbontású leképezésére alkalmas, de bizonyos körülmények között azok lokális módosítására is. Jelentős előrelépést értem el abban, hogy a felületmódosítás pontosságát közel egy nagyságrenddel sikerült megjavítani grafén esetében, így lehetővé téve a grafén nanoszalagok atomi pontosságot megközelítő kialakítását, amely elengedhetetlen a tulajdonságaik tervezett hangolásához és szisztematikus tanulmányozásához. Másrészt kihasználtam az STM atomi felbontású leképezési képességét a kialakított grafén nanoszalagok atomi szerkezetének vizsgálatához, illetve az STM alagútspektroszkópiai üzemmódját a grafén nanoszerkezetek elektronszerkezetének (lokális állapotsűrűségének) feltérképezésére. Az STM méréseket (egy Nanoscope Multimode 8 berendezésen) nagyrészt szobahőmérsékleten és légköri nyomáson végeztem. Ezek az STM mérések számára nem ideális körülmények, ám az STM-litográfiás eljáráshoz éppen a légkör (pontosabban a vízpára) jelenléte adta azt a nélkülözhetetlen előnyt, amely lehetővé tette a megmunkálási pontosság nagymértékű növelését. Az alagútspektroszkópiai mérésekben ezek a körülmények kétségtelenül kompromisszumot jelentettek, így az elektronszerkezet finom részleteit nem tudtam tanulmányozni, ám az olyan robusztus változások, mint egy jelentős (> 100 meV) tiltott sáv létrejötte, megbízhatóan detektálhatók voltak. A különböző grafén szuperrácsok atomi és elektronszerkezetének vizsgálatait szintén STM-mel történtek.

A grafénminták előállítását a klasszikus mikromechanikai szétválasztással, illetve kémiai gőzfázisú leválasztással végeztük. A minták jellemzésére az STM mellett pásztázó atomerő mikroszkópot (AFM – Nanoscope Multimode 8) és Raman-spektroszkópiát (Witec Alpha 300RSA+) használtam. Ez utóbbi berendezést néhány mérés erejéig SNOM (pásztázó optikai közeltér mikroszkópia) üzemmódban is használtam.

Új tudományos eredmények tézisszerű megfogalmazásai

- 1.1 Kifejlesztettem egy új, pásztázó alagútmikroszkópra épülő nanolitográfiai eljárást, amely az STM atomi felbontású leképezését és nanométeres pontosságú felületmódosító képességét ötvözi. Ez a legpontosabb litográfias módszer jól meghatározott kristálytani élekkel rendelkező grafén nanoszerkezetek létrehozására. A szalagok szélességét 0,5 nm pontossággal tudtam szabályozni, a legkisebb, reprodukálhatóan létrehozható szalagszélesség 2,5 nm.

A tézisponthoz tartozó publikáció: [T1]

- 1.2 Az STM-nanolitográfias eljárást különböző szélességű karosszék-élű grafén nanoszalagok létrehozására alkalmazva kísérletileg feltérképeztem a nanoszalagok szélessége és a tiltott sáv szélessége közötti kapcsolatot, amely jó egyezést mutat az első elvekből számolt összefüggéssel. Demonstráltam a karosszék-élű grafén nanoszalagok tiltott sávjának reprodukálható szabályozását.

A tézisponthoz tartozó publikációk: [T1, T2]

- 1.3 Egy éles félvezető-fém átmenetet figyeltem meg cikcakk-élű grafén nanoszalagok szélességének függvényében. Elméleti számolásokkal való összevetésből kimutattam, hogy a félvezető-fém átmenet eredete egy mágneses fázisátalakulás, melynek során a spinpolarizált élű grafén nanoszalag élei közötti mágneses csatolás antiferromágneses (félvezető) állapotból ferromágneses (fémes) állapotba kapcsol. Mérési eredményeim kvantitatív egyezése az elméletileg jósolt elektromos tulajdonságokkal meggyőző bizonyítékát szolgáltatva a cikcakk-élű szalagok élein kialakuló, szobahőmérsékleten is stabil mágneses rendnek.

A tézisponthoz tartozó publikáció: [T2]

- 1.4 Javaslatot tettem egy új, cikcakk-élű grafén nanoszalagokra épülő elektronikai eszköz működési elvére, amelyben elektromos tér segítségével egyaránt vezérelhető a töltés- és spináram. A cikcakk-élű grafén nanoszalagokban észlelt éles félvezető-fém átmenet a töltéshordozó-sűrűség változtatásával létrehozva, egy új, a hagyományos térvezérlésű tranzisztor kapcsolásánál gyorsabban és kisebb kapufeszültségen történő kapcsolási mechanizmust írtam le.

A tézisponthoz tartozó publikáció: [T3]

- 1.5 Egy új atomierő-mikroszkópon alapuló nanomegmunkálási módszert fejlesztettem ki, amelynek lényege a grafénnek magas szimmetriájú kristálytani irányai mentén történő hasítása. A módszer lehetővé teszi a grafén minden korábbinál pontosabb AFM-litográfiás megmunkálását. Megmutattam, hogy az így létrehozott keskeny és jó minőségű élekkel rendelkező grafén nanohidakkal a korábbiaknál sokkal robusztusabb működésű grafén kvantum-pontkontaktus eszközök hozhatók létre, amelyekben a vezetőképesség-kvantálás SiO_2 hordozón és kis kvantumszámoknál is megfigyelhető.

A tézisponthoz tartozó publikáció: [T4]

- 2.1 Kísérleti eredményeim részletes számolásokkal összevetve kimutattam, hogy az elforgatási szög és a rendszerben jelenlévő mechanikai deformáció hatására különböző morfológiájú moiré-szuperrácsok alakulhatnak ki kristályos hordozón elhelyezett grafénban. Megmutattam, hogy kialakulhatnak úgynevezett ultralapos morfológiájú szuperrácsok, valamint, hogy a megvalósuló grafén szuperrács morfológiája és korrugációja nagyon érzékeny a mechanikai feszültségre.

A tézisponthoz tartozó publikáció: [T5]

- 2.2 Kísérletileg kimutattam, hogy Au(111) hordozón elhelyezett grafénban konkáv és konvex morfológiájú szuperrács egyaránt kialakulhat. Ezzel először sikerült kétséget kizáró kísérleti bizonyítékot szolgáltatni a nanoháló (konkáv) típusú grafén szuperrács létrejöttére.

A tézisponthoz tartozó publikáció: [T6]

- 2.3 Létrehoztam és jellemeztem az eddig megfigyelt legkisebb, mindössze 0,7 nm-es hullámhosszú szerkezeti modulációt felfüggesztett grafén nanomembránban. Kísérleteim elméleti eredményekkel való összevetéséből kimutattam, hogy a grafén atomi léptékű szerkezeti deformációit egy olyan kvantummechanikai modell segítségével lehet kvantitatív módon leírni, amely figyelembe veszi a szénatomok síkra merőleges pályáinak átfedését a görbülettel. Alagútspektroszkópiai mérésekkel kimutattam, hogy az atomi kötэшosszokkal összemérhető hullámhosszú szerkezeti szuperrács a grafén elektronszerkezetének helyfüggő modulációját okozza, létrehozva egy nanométer alatti hullámhosszú elektromos szuperrácsot.

A tézisponthoz tartozó publikáció: [T7]

- 2.4 Kidolgoztam egy ciklikus hőkezeléseken alapuló nanomegmunkálási eljárást, amelynek segítségével kivételesen nagy aspektusarányú ($h/R \approx 0.5$) és kis laterális méretű ($D < 5\text{nm}$)

gyűrődéseket lehet létrehozni grafén atomi szerkezetében. Alagútspektroszkópiai méréseimet DFT-számolásokkal összevetve kimutattam, hogy ilyen nanogyűrődések segítségével megvalósítható a grafén töltéshordozóinak élek nélküli kvantumozási lokalizációja.

A tézisponthoz tartozó publikáció: [T8]

2.5 Raman-spektroszkópia és pásztázó optikai közeltér mikroszkópos mérésekkel kimutattam, hogy nanoskálán gyűrt grafén mintákban lehetséges a látható fény frekvenciatartományába eső frekvenciájú grafénplazmonok keltése. Megmutattam, hogy ezek a látható frekvenciájú grafénplazmonok nagyságrendekkel felerősítik bizonyos adszorbeált molekulák Raman-jelét, így a nanoskálán meggyűrt grafén minták felületerősített Raman-hordozóként viselkednek.

A tézisponthoz tartozó publikációk: [T8, Sz1]

Az eredmények hasznosulása

Kutatási eredményeim döntően alapkutatási jellegűek, ezért hasznosulásuk elsősorban közvetve, a kutatási terület egészének fejlődésén keresztül várható. A félvezető és mágneses élű grafén nanoszalagok előállítása direkt relevanciával bír az elektronikai alkalmazások számára, azonban ezek ipari körülmények közötti esetleges hasznosítása még távoli. Hasonló a helyzet a mágneses élű grafén nanoszalagon alapuló elektronikai és spintronikai eszközre tett javaslatommal. Ennek megvalósítása óriási előnyökkel járna a jelenlegi eszközeinkhez viszonyítva, azonban a technológiai nehézségek miatt ez sem valószínűsíthető a közeljövőben. A megvalósított grafén kvantum-pontkontaktus eszköz, amely mágneses tér jelenléte nélkül is kvantált vezetőképesség-értékeket mutat, elvileg akár rövidtávon is hasznosulhatna olcsó elektromos ellenállás-standardként. Egy másik valós alkalmazási lehetőség, a grafén extrém nanoskálájú gyűrésével előállított felületerősített Raman- (SERS-) hordozók. Ennek az a jelentős előnye a kereskedelemben kapható SERS-hordozókhoz képest, hogy sokkal jobb a környezeti stabilitása. A nanorészecskékből felépülő hagyományos SERS-hordozók környezeti stabilitása olyan alacsony, hogy leggyakrabban a mérés előtt közvetlenül célszerű előállítani őket. A gyűrt grafén alapú SERS-hordozó ezzel szemben több hónapig is stabil marad, így akár a boltok polcairól is elérhető lehetne. A nanoskálán gyűrt grafén alapú SERS hordozó eszközre szabadalmi kérelmet nyújtottam be.

A tézispontokban felhasznált tudományos közlemények

Felhasznált folyóirat cikkek:

- T1. L. Tapasztó**, G. Dobrik, P. Lambin, LP Biró, Tailoring the atomic structure of graphene nanoribbons by scanning tunnelling microscope lithography.
Nature Nanotechnology, **3**, 397 – 401 (2008) IF: 33.407
- T2.** G.Z. Magda, X. Jin, I. Hagymási, P. Vancsó, P. Nemes-Incze, Z. Osváth, C. Hwang, L.P. Biró, **L. Tapasztó**. Room temperature magnetic order on zigzag edges of narrow graphene nanoribbons.
Nature, **514**, 608-611 (2014) IF: 42.351;
- T3.** P. Vancsó P, I. Hagymási, **L. Tapasztó**. A magnetic phase-transition graphene transistor with tunable spin polarization.
2D Materials **4**, 024008 (2017) IF: 7.373
- T4.** P. Kun, B. Fülöp, G. Dobrik, P. Nemes-Incze, I. E. Lukács, Sz. Csonka, C. Hwang, **L. Tapasztó**. Quantized conductance in crystallographically oriented graphene nanoconstrictions of high structural quality.
Npj 2D Materials & Applications, **4**, 43 (2020) IF: 9.324
- T5.** M. Szendrő, P. Süle, G. Dobrik, **L. Tapasztó**. Ultra-flat superlattices in 2D heterostructures.
Npj Computational Materials **6**, 91 (2020) IF: 9.341
- T6.** P. Süle, M. Szendrő, G.Z. Magda, **L. Tapasztó**. Nanomesh type graphene superlattice on Au(111) substrate.
Nano Letters **15**, 8295 (2016) IF:12.279
- T7. L. Tapasztó**, T. Dumitrica, S.J. Kim, P. Nemes-Incze, C. Hwang, L.P. Biró. Breakdown of continuum mechanics for nanometre-wavelength rippling of graphene.
Nature Physics **7**, 793-742 (2012) IF: 18,967
- T8.** G. Dobrik, P. Nemes-Incze, B. Majerus, P. Süle, P. Vancsó, G. Piszter, M. Menyhárd, B. Kalas, P. Petrik, L. Henrard, **L. Tapasztó**. Large-area nanoengineering of graphene corrugations for visible frequency graphene plasmons
Nature Nanotechnology közlésre elfogadva (2021) IF: 39,213

Kapcsolódó szabadalom:

Sz1. L. Tapasztó (40%), G. Dobrik (30%), P. Nemes-Incze (20%), P. Vancsó (10%).

Hordozó eszköz felületerősített Raman-szóráshoz, eljárás annak előállítására, valamint grafén szerkezet. P2000410 (2020) *szabadalmi bejelentés*

Kapcsolódó, grafén témájú, saját publikációk:

1. O. Duggerjav, G. Duvjir, **L. Tapasztó**, C. Hwang. Growth of graphene on the Cu (110) surface. *J. Phys. Chem. C* **124**, 12106 (2020)
2. P. Kun, G. Kukucska, G. Dobrik, J. Koltai, J. Kürti, L.P. Biró, **L. Tapasztó**, P. Nemes-Incze Large intravalley scattering due to pseudo-magnetic fields in crumpled graphene. *npj 2D Materials & Applications* **3**, 11 (2019)
3. P. Nemes-Incze, G. Kukucska, J. Koltai, J. Kürti, C. Hwang, **L. Tapasztó**, L. P Biró. Preparing local strain patterns in graphene by atomic force microscope based indentation. *Sci. Rep.* **7**, 3035 (2017)
4. A. Pálkás , G. Molnár, G.Z. Magda, C. Hwang, **L. Tapasztó**, P. Samuely, P. Szabó, Z. Osváth Novel graphene/Sn and graphene/SnO_x hybrid nanostructures: induced superconductivity and band gaps revealed by scanning probe measurements *Carbon* **124**, 611 (2017)
5. P. Süle, M Szendrő, C Hwang, **L. Tapasztó**. Rotation misorientated graphene moiré superlattices on Cu (111): classical molecular dynamics simulations and scanning tunneling microscopy studies. *Carbon* **77**, 1082 (2014)
6. P Nemes-Incze, **L Tapasztó**, G Zs Magda, Z Osváth, G Dobrik, X Jin, C Hwang, LP Biró. Graphene nanoribbons with zigzag and armchair edges prepared by scanning tunneling microscope lithography on gold substrates. *Appl. Surf. Sci.* **291**, 48 (2014)
7. G. Dobrik, **L. Tapasztó**, L.P. Biró. Selective etching of armchair edges in graphite. *Carbon* **56**, 332 (2013)
8. K. Kertész, A.A. Koós, A.T. Murdock, Z. Vértesy, P. Nemes-Incze, P.J. Szabó, Z.E. Horváth, **L. Tapasztó**, C. Hwang, N. Grobert, L.P. Biró. Polarized light microscopy of

- chemical-vapor-deposition-grown graphene on copper. *Appl. Phys. Lett.* **100**, 213103 (2012)
9. G. Dobrik, P. Nemes-Incze, **L. Tapasztó**, P. Lambin, L.P. Biró. Nanoscale lithography of graphene with crystallographic orientation control. *Physica E* **44**, 971 (2012)
10. **L. Tapasztó**, P. Nemes-Incze, G. Dobrik, K.J. Yoo, C. Hwang, L.P. Biró. Mapping the electronic properties of individual graphene grain boundaries. *Appl. Phys. Lett.* **100**, 053114 (2012)
11. L.P. Biró, P. Nemes-Incze, G. Dobrik, C. Hwang, **L. Tapasztó**. Graphene nanopatterns with crystallographic orientation control for nanoelectronic applications. *Diam & Rel. Mater.* **20**, 1212 (2011)
12. P. Nemes-Incze, K.J. Yoo, **L. Tapasztó**, G. Dobrik, J. Lábár, Z.E. Horváth, C. Hwang, L.P. Biró. Revealing the grain structure of graphene grown by chemical vapor deposition. *Appl. Phys. Lett* **99**, 023104 (2011)
13. G. Dobrik, **L. Tapasztó**, P. Nemes-Incze, P. Lambin, L.P. Biró. Crystallographically oriented high resolution lithography of graphene nanoribbons by STM lithography. *phys. stat. sol. (b)* **247**, 896 (2010)
14. **L. Tapasztó**, G. Dobrik, P. Nemes-Incze, G. Vertesy, P. Lambin, L.P. Biró. Tuning the electronic structure of graphene by ion irradiation. *Phys. Rev. B* **78**, 233407 (2008)