UNIVERSITAS SCIENTIARUM SZEGEDIENSIS
SZEGEDI TUDOMÁNYEGYETEM

OPPONENSI VÉLEMÉNY

Tapasztó Levente

Grafén tulajdonságainak hangolása atomi szerkezetének nanométeres léptékű módosításával

című akadémiai doktori értekezéséről

Amint a Jelölt is megállapítja, két évtized távlatából ma már bizonyossággal állítható, hogy a grafén felfedezése új fejezetet nyitott a modern anyag- és nanotudományok területén. Valóban, a grafén az elsőként felfedezett és azóta is a legaktívabban kutatott 2D kristály, így jelen értekezés is ennek az anyagnak és annak korábban kevésbé aktívan kutatott különleges tulajdonságainak vizsgálatára fókuszál, amellett, hogy a Szerző más 2D anyagok kutatásával is aktívan foglalkozik. Témaválasztása, nevezetesen különleges tulajdonságokkal rendelkező 2D grafén szerkezetek előállítása, jellemzése és számos – jelenlegi és lehetséges jövőbeli – (elektronikai, spintronikai, plazmonikus) gyakorlati alkalmazások felvetése minden tekintetben időszerűnek mondható.

A Jelölt a *Bevezetőben* és az *Irodalmi áttekintésben* – akár laikusok számára is – alaposan megindokolja a kutatott téma fontosságát és témaválasztását, ezt követően pedig közel száz tudományos publikáció felhasználásával bemutatja a grafén főbb tulajdonságait, előállítási lehetőségeit, módszereit, ill. a tudományos szakirodalom eddigi ismereteit speciálisan a grafén nanoszalagokról és szuperrácsokról. Megállapítható, hogy a Szerző minden kétséget kizáróan az általa kutatott tématerület ismerője és szakértője. Ezt a megállapítást erősíti, hogy az eredmények bemutatása során további 100 publikáció eredményével hasonlítja össze és támasztja alá a saját eredményeit.

Az *Alkalmazott kísérleti módszerek* fejezet tartalmazza az alkalmazott vizsgálati módszereket (pásztázó alagútmikroszkóp, STM; atomierő mikroszkópia, AFM; pásztázó optikai közeltér mikroszkópia, SNOM és Raman-spektroszkópia;). Ugyanebben a fejezetben mutatja be – viszonylag szűkszavúan – az általa optimalizált módszert, nevezetesen az STM-mel történő felület-manipulálás módszerét, melynek kulcsa abban rejlik, hogy a manipuláció kémiai marással kombinált. Ennek hatására a litográfiához használt feszültség (~10 V) értéke jelentősen csökkenthető (2-3 V közti értékre), így az elektronnyaláb mérete nem szélesedik ki (a korábbi ca. 10 nm-hez képest), ezzel nanométeres litográfiai pontosságot biztosítva.

A tudományos eredményeket 2 nagyobb fejezetben mutatja be, mely eredmények összhangban állnak a 2 fő-, ezen belül 5-5, összesen 10 altézispontban összefoglalt eredményekkel, ill. a tézispontok előtt megfogalmazott célkitűzésekkel. 4.1 fejezetben grafén nanoszalagok STM-litográfiával történő előállítását, azok elektronszerkezeti tulajdonságait mutatja be, valamint az

Alkalmazott és Környezeti Kémiai Tanszék
6720 Szeged, Rerrich Béla tér 1. Tel/Fax: 06-62-544-619
WEB: www.sci.u-szeged.hu/appchem / E-mail: konya@chem.u-szeged.hu

eredmények két lehetséges alkalmazási lehetőségét, úgy, mint grafén nanoszalag alapú tranzisztorok ill. kvantumpont-kontaktus eszközök. 4.2 fejezetben a grafén szuperrácsok vizsgálata során elért eredményeket taglalja, ezen belül is a Moiré-szuperrácsokra, Au(111) hordozón vizsgált konkáv szuperrácsokra és szubnanométeres 1D grafén szuperrácsokra vonatkozó eredményeit. Végül a nanoskálájú gyűrődéseken tapasztalt plazmonikus tulajdonságok SERS alkalmazását taglalja, melyre egy szabadalmi kérelmet is benyújtott.

A tézispontok helytállóságát 8 publikáció (172,255 összesített impakt faktorral) és 1 szabadalmi bejelentés igazolja. Ezek jelentős része kiemelkedő minőségű, a Nature portfólióhoz tartozó közlemény. Ezekhez járul további 14 publikáció, melyek a grafénnel kapcsolatos kutatásainak eredményét mutatja be. A nevezett közlemények tudománymetriai adatai (pl. IF vagy hivatkozások) alapján az értekezés tézisei és az azok alapján bemutatott kutatási eredmények a nemzetközi tudományos közvélemény által ismert és elismert eredményeket összegeznek.

Az értekezés formájával és tartalmával kapcsolatban az alábbi néhány észrevétel, kérdés merült fel:

1) A Jelölt a szakmai megfontolásokon túl – a véleményem szerint is hasznos- további célkitűzéseket is megfogalmaz, nevezetesen azt, hogy az értékezés nyelvezetét – a tudományos igényesség megtartása mellett – az olvashatóság irányába tolja, melynek célja a fiatalabb kutatói társadalom érdeklődésének felkeltése. Megítélésem szerint az előbbi jól sikerült, az utóbbi pedig bizonyosan fog.

2) A dolgozat szerkezete és külalakja ízléses, nyelvezete a tudományos igényesség megtartása mellett gördülékeny és jól olvasható, ugyanakkor a dolgozat ábrái esetén keveredik a magyar és angol nyelv (a forrás angol nyelvű publikációk pontos megjelölése mellett), ami szakmailag elfogadható ugyan, de összhatását tekintve ennek egységesítése „szebbé" és összeszedettebbé tette volna a munkát. Ugyanígy, az ábrafeliratok egységtelensége is szembetűnő sokhelyütt, főként, ami az igazítást (középre/balra), behúzást és a forrás megjelölését (pont előtt/pont után) illeti (pl. 29., 30. és 38. ábrák esetében). Néhány ábrára nincs hivatkozás a szövegben.

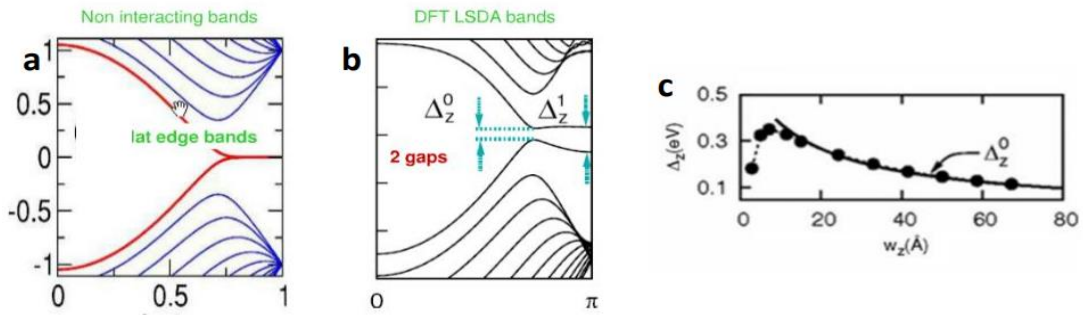
3) Mint fentebb említettem, a *Módszerek 3.2 STM alkalmazása a minta módosítására* fejezetben viszonylag szűkszavúan fogalmaz az Ön által optimalizált eljárásról. Noha ez egy kiváló tudományos eredmény, s ebből következően az *Eredmények* részben taglalja, némileg hiányoltam/hiányolok néhány mondatot, előreutalást azzal kapcsolatban, amit az 59-61. oldalakon részletesen bemutat, nevezetesen a páratartalom döntő szerepéről. Hasonlóan, a 65-66. oldalakon tárgyalt eljárást is talán szerencsésebb lett volna bemutatni a *Módszerek* fejezetben (főként, hogy erre az eljárásra többször is visszautal később), az eredményeket csak a 67. oldaltól kezdi tárgyalni.

4) 4.1.2 fejezet nehezen értelmezhető a kapcsolódó publikáció(k) elolvasása nélkül. Ez önmagában nem nagy probléma, mert remek publikációkról van szó, amik elolvasását kár volna kihagyni, de a fejezetnek anélkül is egy önálló, ezek hiányában is megérthető egységként kellene szerepelnie.

KÓNYA Zoltán, D.Sc.
Alkalmazott és Környezeti Kémiai Tanszék
6720 Szeged, Rerrich Béla tér 1. Tel/Fax: 06-62-544-619
WEB: www.sci.u-szeged.hu/appchem / E-mail: konya@chem.u-szeged.hu

5) A 67. oldalon írja, hogy „az STM-leképezés egy ismert instabilitásának, vagyis, hogy a pásztázás során az STM-tűvel való kölcsönhatás a szalagok éleit képes megemelni”. Ez a jelenség mennyire befolyásolja ezen és a későbbi mérések pontosságát?

6) A 25. ábrán a (61) hivatkozás alapján azt látjuk, hogy az eredeti Hubbard-modell alapján végzett DFT számolások az elektron-elektron kölcsönhatás figyelembevétele nélkül vezető tulajdonságokat jósolnak, azok figyelembevételével félvezető jelleget (25.b). Ennek megfelelően a 25.c ábrán egy monoton lecsengő tiltott sáv szélesség görbét láthatunk a szalag szélességének függvényében.

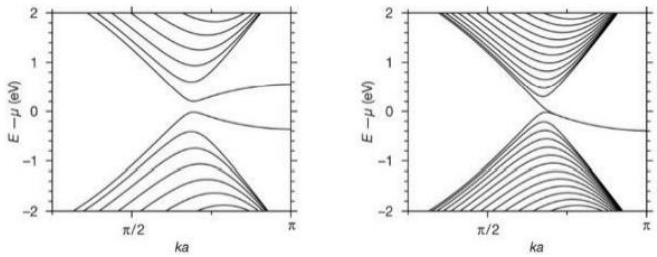


25. ábra. Cikcakk-élű grafén nanoszalagok sávszerkezete DFT számolásokból, elektron-elektron kölcsönhatás nélkül (a), annak figyelembevételével (b), valamint a kölcsönhatásból eredő tiltott sávnak a szalag szélességétől való függése (c) [61].

Ugyanakkor, azzal, hogy a Jelölt és mtsai a modellt és az abban használt Hamilton operátort kibővítették egy *μN* taggal, mely a dópolás és véges hőmérséklet hatását veszi figyelembe (71. oldal), az eredeti modellel nyert eredményekkel összevethetőeket kaptak (54. ábra). Nevezetese, az e-e kölcsönhatás nélkül nyert eredmény (25.a) és az e-e kölcsönhatást tartalmazó, *μN* taggal kibővített modell 10 nm széles esetben (54. jobb oldalon) kísértetiesen hasonlítanak. Hasonlóan, az e-e kölcsönhatást figyelembe véve nyert eredmény (25.b) és az e-e kölcsönhatást tartalmazó, μN taggal kibővített modell 5 nm széles esetben (54. bal oldalon) is rendkívül hasonlóak (mind a spinfüggő állapotsűrűségek, mind a sávszerkezetek).

Elképzelhető-e bármilyen olyan hatás atomi vagy (szub-)nanométeres szinten, melynek során az atmoszférikus körülmények (szobahőmérséklet, páratartalom) gyengítik az elektron-elektron kölcsönhatás mértékét (azaz nem függetlenek), s ezt a szalagok szélességétől függően különböző mértékben? Azaz, mintha a 71. oldalon bemutatott Hamilton-operátor második és harmadik tagja nem lenne független egymástól?

KÓNYA Zoltán, D.Sc.
Alkalmazott és Környezeti Kémiai Tanszék
6720 Szeged, Rerrich Béla tér 1. Tel/Fax: 06-62-544-619
WEB: www.sci.u-szeged.hu/appchem / E-mail: konya@chem.u-szeged.hu



54. ábra. Kibővített Hubbard-modellben számolt spinfüggő állapotsűrűségek és a megfelelő sávszerkezetek a) egy 5 nm széles (antiferromágneses – félvezető) és b) egy 10 nm széles (ferromágneses – vezető) cikcakk-élű grafén nanoszalagon.

(7) Rendkívül előremutatók a 76-86. oldalakon bemutatott, gyakorlati felhasználás irányába elmozduló kísérletek és eredmények.

(8) Csodálkozom, hogy a Jelölt és munkatársai által azonosított és elnevezett, tehát újnak tekinthető lánc struktúra bemutatása (92. oldal) nem szerepel a tézisek közt, mint új eredmény.

(9) Korábban is említettem az ábrák magyar/angol nyelvű keveredését. A 4.4.2 fejezetben ez kimondottan zavaró (pl. 68. ábra), ahol a szövegben szereplő mennyiségek indexelése esetében szisztematikusan *g* és *h* jelöléseket használ, az ábrákon pedig *o* és *s* karaktereket. Csak az olvasó fantáziáján múlik a grafén/overlayer és hordozó/substrate párok megfejtése.

(10) Szintén nem könnyíti (a témában nem rutinos olvasó számára) a szöveg értelmezését a nanoháló és a konkáv szuperrács kifejezések váltogatása: feltételezhető, hogy ez a szóismétlések elkerülése miatt van, de a konvex szó folyamatos használata sem zavaró, a konkáv esetében sem lett volna az. Megjegyzem, egy helyen a Szerző is eltévesztette: 94. oldal *„… (ugyanazon a grafén szemcsén) észleltünk konkáv- és nanoháló-típusú grafén szuperrácsot is (71. ábra)”*.

(11) 4.2.3 fejezetben a Jelölt bemutatja az arany hordozón létrehozott grafén szuperrácsokra vonatkozó eredményeit, melyek szerint konkáv esetben 0,3 nanométeres korrugációt mértek, melyet DFT számolások is megerősítettek. Ugyanebben a fejezetben hivatkozza a (169) publikációt, melyben ugyanilyen körülmények közt egy nagyságrenddel alacsonyabb korrugáció értékek szerepelnek. Mi lehet az eltérés oka?

(12) Ugyanehhez a fejezethez kapcsolódóan: a grafén réteg arany hordozóra történő felvitelét a 49. ábrán bemutatott transzfer módszerrel valósították meg. Ha ez szobahőmérsékleten történt, akkor is megvalósulhat az arany felület ilyen mértékű rekonstrukciója? Hasonló mértékben, mint a hivatkozott (169) hivatkozásban? A kérdésem arra is irányul, hogy a PMMA-t a transzferhez használó és hivatkozott (136) publikációban (66. oldal) szerepel 500 °C fokos hőkezelés a PMMA eltávolítása után, de sem ebben az értekezésben, sem a módszert bemutató 49. ábra feliratában szereplő (137) doktori értekezésben nem találtam erre utalást.

KÓNYA Zoltán, D.Sc.
Alkalmazott és Környezeti Kémiai Tanszék
6720 Szeged, Rerrich Béla tér 1. Tel/Fax: 06-62-544-619
WEB: www.sci.u-szeged.hu/appchem / E-mail: konya@chem.u-szeged.hu

(13) A 83. ábra és korábban a 67. ábra nagyfokú hasonlóságot mutat. Van-e valamilyen analógia a két jelenség között? (Annak ellenére, hogy az egyik a grafén szuperrácsokhoz és másodlagos Dirac-kúpok kialakulásához köthető, míg a másik a graféngyűrődésekhez kapcsolódó töltéslokalizációkkal kapcsolatos).

Összefoglalva megállapítom, hogy Tapasztó Levente doktori értekezése a szakmai követelményeknek messzemenően megfelel. A bemutatott eredményeket a Jelölt új tudományos eredményeinek ismerem el – ezek kiemelkedő tudományos tevékenységet mutatnak be és további színvonalas kutatómunkát vetítenek előre.

A fentiek alapján javaslom az MTA Doktori Tanácsának a benyújtott értekezés nyilvános vitára bocsátását, majd az Akadémiai Doktori cím odaítélését.

Szeged, 2022. november 23.

Kónya Zoltán,

az MTA doktora

KÓNYA Zoltán, D.Sc.
Alkalmazott és Környezeti Kémiai Tanszék
6720 Szeged, Rerrich Béla tér 1. Tel/Fax: 06-62-544-619
WEB: www.sci.u-szeged.hu/appchem / E-mail: konya@chem.u-szeged.hu