Válaszok Dr. Kónya Zoltán bírálatára

Elsősorban szeretném megköszönni Dr. Kónya Zoltánnak az MTA Doktori értekezésem alapos bírálatát, a róla kialakított pozitív véleményét, illetve, hogy felhívta a figyelmem azokra a részletekre, amelyek további pontosítást, tisztázást igényeltek. A feltett kérdéseire, az alábbi válaszokat adom:

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.

Köszönöm a megerősítést.

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.*

Jogosak az ábrákra vonatkozó formai megjegyzések.

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.*

Itt valóban felvetődik egy dilemma, ugyanis az eredmény maga tartalmaz egy módszer (tovább) fejlesztést. Ilyen esetben nem mindig egyértelmű, hogy ennek részleteit az alkalmazott kísérleti módszerek vagy az eredményeket bemutató fejezetben érdemes kifejteni. Én azt választottam, hogy a módszereket bemutató fejezetben csak az irodalmi eredményeket tárgyalom, majd a módszer továbbfejlesztését a saját eredmények fejezetben mutatom be. Például a páratartalom hatása igen fontos, de arra az irodalomban nem található vizsgálat, annak jelentőségét mi tártuk fel, ezért maradt ki a módszerek irodalmi részben való tárgyalásából. Valóban jó kompromisszumos megoldás lehetett volna a Kónya professzor által tett javaslat, hogy már a módszerek résznél is megemlítem a módszer saját tovább fejlesztésének fontosabb aspektusait. Ami a 49. ábrán szemléltetett transzfer eljárás leírását illeti, abban teljes mértékben egyetértek a Bírálóval, a Módszerek részben jobb helye lenne.

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.

Igyekeztem az irodalmi részben (2.1.1.) áttekinteni a 4.1.2. fejezet eredményeinek értelmezéséhez szükséges alapokat, de valóban így sem könnyű minden részlet értelmezése. Gyakrabban kellett volna visszautalnom és - bár így sem rövid a fejezet - érdemes lett volna még részletesebben kifejteni a tárgyalást.

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?

Szerencsére ez nem jelent igazán komoly gondot. Az alagútspektroszkópiai méréseket, jellemzően a szalag közepén végeztük, ahol a jelenség nem lép fel. A topográfiai STM méréseknél a jelenség viszonylag kis tű-minta távolságok (kis feszültségen, nagy árammal történő leképezés) esetében jelentős, ilyet pedig csak akkor vagyunk kénytelenek használni, ha nagyfelbontású topográfiai képeket akarunk készíteni (atomi felbontás). Viszont nem szükségesek atomi felbontású topográfiai képek a szalagok szélességének meghatározásához, amelyet nagyobb tű-minta távolságokkal mértünk, kiküszöbölve ezt a zavaró tényezőt.

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. 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). Nevezetesen, 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?

Valóban a kölcsönhatás nélküli irodalmi sávszerkezet (25.a ábra) hasonlít az általunk használt kibővített modellből származó, kölcsönhatásokat (valamint a dópolást és hőmérsékletet) is figyelembe vevő ferromágneses állapot sávszerkezetére (54.b ábra). Azonban a látszólagos hasonlóság ellenére jelentős különbség is van közöttük. Mindkettő fémes viselkedést mutat, de

míg a kölcsönhatásmentes modellben egy teljesen lapos sáv (nagy állapotsűrűség) található a Fermi szinten (ennek megfelelően az alagútspektroszkópiai mérésekben egy csúcsot kellene látnunk), addig a saját modellben ez a sáv „elhajolt" (véges diszperziója lett), vagyis nem várunk csúcsot a lokális állapotsűrűségben. A kísérletek az utóbbit erősítik meg, nem látunk ilyen csúcsot. A lapos sáv (csúcs) jelenléte/hiánya a két modellben alapvető különbség, hiszen a kölcsönhatásokat figyelembe véve az előbbinek sokkal nagyobb az energiája. A kölcsönhatások mindig igyekeznek megszüntetni a számukra kedvezőtlen lapos sávokat, ezt kétféleképpen is meg tudják tenni: az egyik egy tiltott sáv nyitása, mint az anti-ferromágneses esetben, a másik, hogy a rendszer ugyan fémes marad, de a lapos sáv megszűnik egy elhajlás (véges diszperzió) révén, mint a ferromágneses csatolás esetében.

Ami az irodalmi 25.b és a saját 54.a ábra összevetését illeti, itt a hasonlóság tényleg nagyfokú, de ebben az esetben ez az elvárható, hiszen ugyanazt a kölcsönható anti-ferromágneses állapotot írják le. Amivel a saját, kibővített modell többet tud, az a kísérletileg észlelt félvezető–fémes átmenetet kvantitatív leírása a szalag szélességének függvényében. Ezt az antiferromágneses (félvezető) – ferromágneses (fémes) átmenetet az általunk használt modell kvantitatívan leírja, míg más modell még kvalitatívan sem tudja reprodukálni.

A környezet (légkör, hordozó) a töltések részleges leárnyékolása révén képes gyengíteni (árnyékolni) az elektron-elektron kölcsönhatásokat. Itt elsősorban a hordozónak van jelentős szerepe. Esetünkben az arany hordozó jelentős szabadelektron-sűrűséggel rendelkezik. A levegőnek kitett mintákra a légkörből elsősorban olyan molekulák (alkánok) tapadnak ki stabilan a grafén felületre, amelyek kevésbé képesek az elektromos árnyékolásra és ezáltal a grafénban a kölcsönhatások gyengítésére. Arra nem utal semmi, hogy a környezeti hatások közül bármelyik árnyékoló hatása a szalag szélességétől függene. Amennyiben a kölcsönható ferromágneses fázis helyett valahogy mégis a szintén fémes, paramágneses fázis jelenne meg a szélesebb szalagok esetében, az alagútspektroszkópiai mérésekben észlelnünk kellene a nem kölcsönható cikcakk élekre jellemző lapos sávnak megfelelő csúcsot. Ilyet kísérletileg nem figyeltünk meg.

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

Köszönöm a megjegyzést.

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.

Ennek az a gyakorlati oka, hogy kísérleti eredményekkel a lánc fázis létezését nem erősítettük meg. STM mérésekkel nem is igazán lehet, hiszen a konvex fázistól csak az alsó réteg vizsgálatával lehetne megkülönböztetni, amire STM-mel nincs lehetőség. Kétségtelenül egy fontos új eredmény, ám ebben a formában ez elsősorban a számításokat végző Szendrő Mártonhoz köthető.

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.

Jogos észrevétel, egységesen a magyar jelölések használata lett volna indokolt.

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)”.

Valóban, itt a konkáv helyett konvex a helyes. Azzal is egyetértek, hogy jobb megoldás következetesen vagy a konkáv vagy a nanoháló elnevezés használata.

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?

Ez pusztán elírás, úgy a mérések, mint a számítások esetében 0.3 Angström a valós korrugációs érték. A vonatkozó saját publikációban [T6] helyesen vannak megadva ezek az értékek, amelyek így az irodalmi értékkel is jó egyezést mutatnak.

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.*

Az arany 111 kristálysíkjának halszálka típusú rekonstrukciója szobahőmérsékleten is megjelenik. Az arany felületek gyakorlati STM mérése folyamán akkor tudjuk, hogy jó minőségű Au 111 felületünk van, ha észleljük ezt a típusú jellegzetes felületi rekonstrukciót. A PMMA eltávolítása (leoldása) után a hőkezelést a PMMA-ból visszamaradt szennyeződések (a grafénhoz tapadó nanométeres PMMA maradványok) eltávolítására, azaz a minta tisztítására használják. Mi nem használtuk ezt a hőkezelési eljárást, ezért nem szerepel a leírásban. Az STM tű a megfelelő körülmények között képes maga is megtisztítani a grafén felületét a pásztázott területen, ezért nem volt szükségünk más tisztítási eljárásokra.

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).

Valóban felfedezhető hasonlóság a két ábrán mutatott alagútspektrumok között. Olyan szempontból talán nem is lenne meglepő, hogy mindkét esetben a grafén síkjára merőleges szerkezeti deformációkat hozunk létre, amelyek befolyásolják a mért állapotsűrűséget. Azonban az állapotsűrűségben megfigyelt csúcsok eredete (kialakulásuk mechanizmusa), mégis jelentősen különbözik. Az első esetben a grafén szerkezetének gyenge (kis amplitúdójú), de periodikus modulációról van szó, ahol a periodicitás hatására másodlagos Dirac kúpok jönnek létre magasabb energiáknál. Ezeknek tulajdonítható a 67. ábrán az alagútspektrumokban

megfigyelt csúcsok kialakulása. A gyűrt grafén esetében viszont nem periodikus, de igen erős (nagy amplitúdójú) szerkezeti moduláció révén jönnek létre lokalizált elektronállapotok, amelyek szintén csúcsokként jellennek meg az alagútspektrumokban (83. ábra).

Budapest, 2023. 02. 08

Tapasztó Levente