Opponensi vélemény

Tapasztó Levente

Grafén tulajdonságainak hangolása atomi szerkezetének nanométeres léptékű módosításával

című MTA doktori értekezésről

A grafitból leválasztott egyetlen atomi réteg vastagságú kristálysík, a grafén felfedezése új fejezetet nyitott a modern anyag- és nanotudományok területén. Konsztantin Novoszelov és André Geim Nobel-díjjal kitüntet eredményének elsősorban nem az a különlegessége, hogy elkülönítette az atomi vékonyságú grafénkristályt hanem, hogy kontaktusokat erősítve, elektromos transzport méréseket tudtak végezni a kétdimenziós grafénen, és a Landau-nívók vizsgálatával megmutatták, hogy az elektronállapotok megfeleltethetők a kétdimenziós Dirac-elektron állapotaival. Ez az eredmény alapkutatás szintjén is kiemelkedő, hiszen utat nyitott a Van de Waals kölcsönhatással kapcsolódó különféle kétdimenziós kristálysíkokból létrehozott még egzotikusabb sávszerkezettel rendelkező úgynevezett heteroszerkezetek feltérképezése felé. Végső soron ezen anyagok speciális elektron-sávszerkezetnek köszönhetően az alkalmazást illetően is számos előnyös fizikai tulajdonságokkal kecsegtetnek.

Tapasztó Levente maga is aktívan kutat a grafénon kívül más 2D anyagokat. Ugyanakkor a jelen MTA disszertációjában elsősorban a grafénen végzett több, mint egy évtizedes kísérleti eredményeinek bemutatására fókuszál. A fentiek alapján a szerző témaválasztása és annak időszerűsége nekem nem kétséges.

A dolgozat négy fejezetből, a tézisekből, illetve az igen részletes, 205 irodalmi hivatkozásból áll. A bevezetőt követően a 2. fejezet a grafénnel kapcsolatos alapvető elméleti ismeretek, míg a 3. fejezet az alkalmazott kísérleti módszerek rövid összefoglalását tartalmazza. A saját eredmények több alfejezeten keresztül a 4. fejezetben olvashatók, végül a jelölt a legfontosabb eredményeit az 5. fejezetben lévő tézisekben foglalta össze.

A bemutatott főbb eredmények közül következőket emelném ki: i) új STM pásztázó elektronmikroszkópos eljárással nanométeres pontosságú grafén szalagok kialakítását valósította meg, ii) javaslatot tett cikkcakk-élű grafén nanoszalagokban történő töltés és spináram vezérlésére, iii) a kristályos hordozón elhelyezett grafénben az elforgatás szögétől és a mechanikai deformációk következtében kialakuló Moiré-típusú grafén szuperrácsok feltérképezése, osztályozása. Tapasztó Levente kutatásának eredményességét jól mutatja, hogy ebben az időszakban 21, rangos nemzetközi folyóiratban megjelent cikket és egy szabadalmat publikált, melyek egyben a dolgozatának az alapját is képezik.

Az értekezés gondosan kivitelezett, az ábrák minősége is megfelelő, a hivatkozások nagy száma egy igen alapos munkát tükröz. Bár a jelölt kutatása egyértelműen kísérleti munka, minden esetben a kutatócsoportjában résztvevő munkatársaira és a nemzetközi kapcsolataira építve elméleti számításokkal is igyekszik igazolni, illetve értelmezni a kapott eredményeket. Így a jelölt kutatása, a megjelent publikációi jól tükrözik a kísérleti és elméleti munka összhangját, magas színvonalát.

A dolgozat olvasása alapján bátran mondhatom, hogy a szerző rendkívül magabiztos a grafén kutatása terén. A bemutatott eredmények összefoglalása a hazai szakemberek számára is igen hasznos lehet. Éppen ezért egyetértek a szerzővel — ahogy a dolgozatában is említi — a dolgozat a „fiatalabb munkatársak kezébe kerülve felkelti érdeklődésüket a bemutatott tudományterület iránt." Úgy vélem, hogy a fizikus közösség számára értékes és hasznos lehet, ha az MTA doktori eljárásában a pusztán saját eredmények felsorolása mellett az áttekintő, összefoglaló művek nagyobb hangsúlyt kapnának a jövőben. Tapasztó Levente dolgozata erre egy jó példa.

A továbbiakban a szakmai kérdéseimet, megjegyzéseimet ismertetném.

Szakmai kérdések:

1. A 13.b ábrán rézfólián a CVD grafén növekedésének SEM képe látható. Lehet-e optikai mikroszkóppal is látni, ahogy a SiO_2 hordozón lévő grafén pikkelyeket felfedezték?

2. A 69. oldalon olvasható: „Azonban a kísérletek egyértelműen megmutatták, hogy bizonyos karosszék-élű szalagok valóban fémes jellegűek, vagy nagyon kis tiltott sávval rendelkeznek.”, míg ennek az oldalnak a végén: „Az STM-litográfiával előállított karosszék szalagok tiltott sávja elegendően széles, hogy belőlük szobahőmérsékleten is megbízhatóan működő digitális elektronikai eszközöket hozzanak létre.”

   Nem világos, hogy a fenti két állítás alapján lehet/érdemes vagy nem lehet/nem érdemes ilyen elektronikai eszközt csinálni.

3. A 70. oldal végén olvasható: „Ennek a korrelált állapotnak az a további lenyűgöző jellemzője, hogy az élekre lokalizált töltéshordozók spinjét polarizálja, alapesteben a szalag két élén ellentétes (antiferromágneses) irányban [61].” Felmerül a kérdés, hogy a kölcsönhatás miért polarizálja az élállapotokat, milyen folyamat miatt lehetséges ilyen korrelált állapot létrejötte?

4. A szerzőnek a cikcakk-élű grafén nanoszalagokon kialakuló élmágnességgel kapcsolatos méréseiből kapott gap értéke és ennek szélességfüggése kitűnő egyezésben van az elméleti számolások eredményeivel, melyeket a Hubbard-modell alapján számoltak a csoportban résztvevő elméleti kutatók (lásd a 55. ábrát). Az egyetlen illesztési paraméter, a Coulomb-kölcsönhatást jellemző U (on-site repulsion) mennyiség értéke 3.2 eV, ami benne van a más elméleti számításokból kapott becslési tartományban (2 – 6 eV). Ugyanakkor, nyilvánvaló, hogy U értéke és ezzel együtt a gap nagysága is erősen függ a hordozó anyagától, ezért pontos értéke igen fontos. A [145] hivatkozásban NaCl egyréteg-hordozóra helyezett cikcakk-élű grafén nanoszalagokat tanulmányoztak kísérletileg és elméletileg (ab initio) is, és az eredmények konzisztensek a szerző eredményeivel.

   Felmerül a kérdés, hogy vannak-e más szisztematikus kísérleti/elméleti vizsgálatok arra nézve, hogy hogyan függ a gap értéke a hordozó anyagától, illetve a szalag szélességétől?

   Itt jegyzem meg, hogy a 72. oldal elején: „ ... a harmadik tag a már említett dópolás és véges hőmérséklet hatását veszi figyelembe nagykanonikus sokaságban, ...” állításban a harmadik tag nem a véges hőmérséklet hatását veszi figyelembe. Elvben kanonikus sokaságban is lehetne számolni véges hőmérsékleten. A harmadik tagot az adott dópolás miatt célszerű bevenni a Hamilton-operátorban.

5. A jelölt csoportjával együtt egy új, AFM-litográfiás mechanikai hasítási módszert dolgoztak ki, amellyel a grafén éleit jóval pontosabban és szabályosabban lehet kialakítani. Az így létrehozott grafén kvantum-pontkontaktuson végzett transzportmérésekkel sikerült kvantált vezetőképesség-lépcsőket megfigyelni, amelyre korábban nem volt példa.

   A 85. oldalon olvasható: „Mágneses térbe (8T) helyezve egy grafén nanohidat (kvantum-pontkontaktust), a vezetőképességben észlelt lépcsők e^2/h távolságra követik egymás, azaz ebben az esetben már a spin szerinti degeneráció is felhasad, ahogy azt mágneses térben várjuk. ” Ez az állítás ellentmond a szerző által idézett [159] cikkben talát eredménnyel, ahol csak $2e^2/h$ lépcsőket találtak. Mi lehet ennek a magyarázta?

   Továbbá érdekelne, hogy mi a véleménye a jelöltnek, hogy a módszer alkalmas-e atomi pontos nanoszalag megmunkálására, ahogyan ez először sikerült a jelöltnek STM-nanolitográfiás eljárással.

6. Mi az oka, hogy a 73. ábrán látható fázishatárok a Moiré-szuperrácsok fázistérképen nagyon jó közelítéssel egyenes vonalak? Ez számomra meglepő.

7. A 83.a ábrán az alagútspektrumokon viszonylag kis vállak/csúcsok láthatók ±450 mV feszültség környékén, ellentétben a DFT számolásokkal (83.b ábra). Továbbá a csúcsok nem szimmetrikusan helyezkednek el a zérus feszültségre. Mivel magyarázható ez az eredmény? Van-e más kutatási eredmény, hogy a gyűrődés hogyan változtatja meg a lokális állapotsűrűséget?

A pontosítás érdekében itt jegyezném meg, hogy a gyűrődés miatt megszűnik a periodikus rácsszerkezet, és így nem beszélhetünk a továbbiakban sávszerkezetről, ellentétben azzal az állítással, ami a 83. ábra alatt olvasható.

További kérdésem, hogy 83.a ábrán a három színes görbéhez milyen és mekkora paraméter felel meg?

8. A 85. ábrán a sima és gyűrt grafénre a számított optikai vezetőképességében, a $\mathrm{Re}(\sigma)$ mennyiségben kb. 300 nm-nél látható egy csúcs. Miért itt van a csúcs? Ismeretes, hogy az optikai vezetőképességben a csúcs helye függ a kémiai potenciál nagyságától. Mennyi volt ez a számítások során?

Tisztázó kérdések a szakmai megértéshez:

1. A 30. oldalon a 18. ábrán mik a paraméterek az egyes görbéknél, a szövegben nincs erre utalás.
2. A 34. oldalon a 22.b ábra milyen irányú metszete a baloldali ábrának?
3. A 24.a ábrán mit jelent a $N_a = 3p + ...$, és a 24.b ábrán a Δ paraméterek?
4. A 69. oldalon az 52.a ábrán szerepel a $3n, 3n+1, 3n+2$. Bár sejtem, hogy ezek mit jelentenek, talán szerencsés lenne ezt tisztázni.
5. Nem teljesen értem a 73. oldalon „Egy félig töltött rendszerben a félvezető aFM állapot energiája mindig kisebb, hiszen a vegyértéksáv teteje a Fermi-szint alá kerül. ” állítást. Lehetne ezt részletesebben kifejteni vagy megadni egy hivatkozást?
6. Gondolom a 75. oldalon az 56.a. ábrán a kék/piros karikák mérete a mágneses momentum nagyságát reprezentálja? Erre nem találtam utalást a dolgozatban.
7. A 81. oldalon az 59. ábrán mit jelent I_{SD}?
8. Moiré-szuperrácsok fázisdiagramjának vizsgálatában a jelölt a grafénrétegre és a hordozóra külön-külön a kívánt δg és δh nagyságú, homogén biaxiális deformációt alkalmazta. Mit jelentenek ezek a mennyiségek, hogyan változtathatók a deformáció során?

   A 68. ábrán a δ_o és δ_s mennyiségek szerepelnek, gondolom ezek a fenti mennyiségeket jelentik?
9. A 105. oldalon olvasható: „ ... a kémiai kötések kvantummechanikai leírásán alapuló atomisztikus modellt dolgoztunk ki ...” Nem találtam utalást arra, hogy ki dolgozta ki ezt a modellt? A [174]-es hivatkozásban nem látok olyan szerzőt, aki a jelölt csoportjában dolgozik.
10. A 14. oldalon szerepel: „A völgyön belüli (intra-valley) visszaszórás csak pszeudospin-átfordulással együtt lehetséges, amihez viszont speciális szórócentrumokra van szükség. Ilyenek lehetnek például a lokális mechanikai feszültség következtében kialakuló, erős pszeudomágneses terek. ”. Hasonlóan állítás szerepel a 108. oldalon.

    A témában kevéssé jártas olvasónak talán nem világos, hogy mit jelent a pszeudo-mágneses tér, mi köze van a grafén mechanikai deformációhoz, illetve hogyan válik védetté a visszaszórási folyamat. Érdemes lenne jobban kifejteni ezt kérdéskör. Később a 113. oldalon szerepel a témával kapcsolatban két, az irodalomban meghatározó cikkre való hivatkozás ([190,191]). Szerencsés lenne a fenti részekben is hivatkozni ezekre a cikkre.
11. A 109. oldalon a 80.a ábra feliratában olvasható: „Topográfiai AFM kép Si/SiO2 hordozón hőkezeléssel megyűrt grafénról, amely egy-, két- és többrétegű területeket is tartlamaz.” Kérdésem: a szokásos optikai mikroszkóppal detektálták a rétegek számát?

12. A jelölt az általa kifejlesztett STM, illetve AFM módszerrel a grafén nanométeres pontosságú megmunkálását elsőként valósította meg. Ezeket eredményeket az 1.1 és 1.5 tézispontokban fogalmazta meg. Az érdeklődő olvasónak hasznos lenne összehasonlítani a két eljárást, hangsúlyozni az előnyöket, hátrányokat, a kísérletekben felmerülő nehézségeket. Részletezni, hogy mikor melyik módszer jobb az alkalmazások szempontjából.

Megjegyzések:

1. Itt említeném meg, hogy talán szerencsés lett volna a saját eredményeket ismertető 4. fejezetben az egyes alfejezetek elején egyértelműen megadni, hogy az irodalmi hivatkozások közül melyek az adott fejezetre vonatkozó saját publikációk. Persze ezek a cikkek a tézisek olvasása után kisebb munkával egyértelműen azonosíthatók. Hasonlóan, itt lehetett volna megemlíteni, hogy a fejezetek mely tézispontokhoz kapcsolódnak.

2. A 90. oldalon olvasható: „ ... ezek elsősorban Szendrő Márton kollégám munkáját képezik.", illetve a 100. oldalon olvasható: „Dr. Süle Péter nevéhez köthetők, segítségével viszont meg tudtuk vizsgálni a relaxált rendszer minden összetevőjét.", és a 112. oldalon olvasható: „... A molekuladinamikai számításokat Dr. Süle Péter kollégám végezte." Az egyértelműség kedvéért meg kellene adni a hivatkozásokat ezekre munkákra.

Kisebb elírások:

1. Nagyon kevés az elírás a dolgozatban. Néhányat felsorolok, de ezek egyáltalán nem befolyásolják az érthetőséget. A 4. old. „kölcsöönhatás", 76. old. „elmélleti ", 80. old. „hagyomámnyos ", 111. old. „összenymó ", „graféngyűrőd ésekben ", 109. old. „tartlamaz ", 118. old. „érdeksek ", 119. old. több helyen is: „palzmonokat ".

Összefoglalva, a bírálatban felsorolt kérdéseim, illetve megjegyzéseim ellenére Tapasztó Levente doktori értekezése szakmailag kitűnő munka. Úgy vélem, hogy az észrevételeimre adott válaszok hasznosak lehetnek a terület iránt érdeklődő olvasó számára. A tézispontokat teljes mértékben elfogadom.

Tapasztó Levente doktori munkájának tudományos eredményei teljes mértékben megfelelnek az MTA doktori cím megszerzéséhez, és javaslom a nyilvános védés kitűzését.

Budapest, 2022. október 10.

Cserti József
ELTE, Komplex Rendszerek Fizikája Tanszék