

## Válaszok Dr. Gali Ádám kérdéseire

Szeretném megköszönni Dr. Gali Ádámnak a bírálattal kapcsolatos munkáját, a bírálatban az értekezéshez fűzött elismerő megjegyzéseit és az érdekes kérdéseket. A Bíráló által tett megjegyzésekre vonatkozó válaszokat az alábbiakban foglaltam össze.

A Bírálónak két megjegyzése van a dolgozatban ismertetett tudományos eredményekkel illetően.

1: “A dolgozat több részében előfordul, hogy DFT eredményekre illeszt paramétereket. A leírás alapján a DFT számításokat nem a szerző végezte, hanem együttműködésben kapta vagy az irodalomból vette. Ennek ellenére fontos lett volna, ha pontosan definiálja, hogy melyik DFT funkcionált használta. Az eredményekből gyanítható, hogy vagy lokális sűrűségfukcionált vagy pedig valamelyik általánosított gradiens sűrűségfukcionált használták (féllokális), amelyek valóban alulbecsülik a tiltott sávot. Ez különösen az 5.1 táblázatban szúr szemet, ahol az egyik soktest-perturbációs módszerrel kapott (ú.n. GW-módszer) eredmények lényegesen nagyobb tiltott sávot adnak, amelyekből radikálisan eltérő Hamilton-operátor paraméterek származnak. Ugyanakkor vannak olyan DFT funkcionálok (tipikusan ú.n. hibridfunkcionálok), amelyek a kísérletekkel és GW-módszerekkel egyező tiltott sávot adhatnak”.

Az dolgozat 5.1 táblázatában valóban nincs feltüntetve, hogy pontosan milyen sűrűségfukcionál használatával kaptuk az ott megjelenő tiltott sáv értékeket. A sávszerkezet számítások lokális sűrűségfukcionállal (LDA) történtek, azonban az eggyel korábbi lépésben, a geometriai relaxáció során a HSE06 hibrid funkcionál került felhasználásra, mert ez adta a legjobb egyezést az ismert kísérleti rácsvektor értékekkel.

Sáv szerkezet számolások a HSE06 funkcionál felhasználásával csak egy esetben, egyrétegű MoS<sub>2</sub> esetén készültek, lásd Fig. 1. ábrát. Ezen eredmények rövid értékelése a Ref. [2] publikáció (a tézispontokban a [2] hivatkozás) függelékében található meg. A Fig. 1 ábrán látható számolásokban a spin-pálya csatolás (SOC) nem került fi-

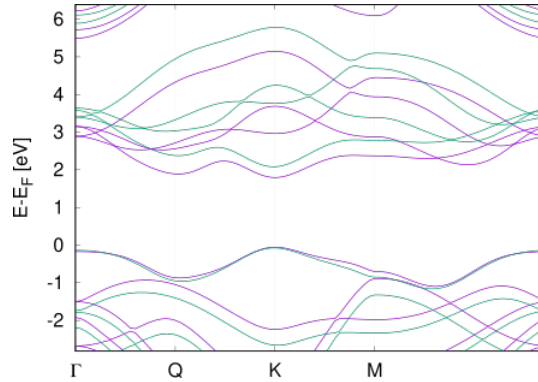


FIG. 1: DFT sáv szerkezet számolás egyrétegű MoS<sub>2</sub>-re. Lila: LDA funkcionál, zöld: HSE06 funkcionál.

gyelembé vételre. Az eredmények szerint a HSE funkcionállal kapott tiltott sáv értéke a Brillouin zóna  $K$  pontjában kb 300 meV-tal nagyobb, mint az LDA-val kapott. Azt tapasztaltuk, hogy a HSE-val végzett számolások a LDA számolások idejének sokszorosát igényelték. Az SOC figyelembe vétele, amelynek szerepe igen fontos a tanulmányozott anyagokban, jelentősen még tovább növelte volna a HSE-val folytatott sáv szerkezet számolásokra szükséges időt. Figyelembe véve a rendelkezésre álló számítási kapacitásokat, kollégáimmal ezért úgy döntöttünk, hogy a későbbiekben a Ref. [1]-ben (HSE,LDA)-nak nevezett eljárást követjük, ami azt jelentette, hogy a geometria relaxációban a kollégáim használták a HSE-t, de a sáv szerkezet számolásban nem.

Érdekes megemlíteni, hogy egyrétegű átmenetifém dikalkogenidnek tiltott sávjának első elvekből való számítása olyanynyira nem triviális, hogy még egy 2023-as publikáció<sup>3</sup> is érdemesnek tartotta ezt részleteiben tárgyalni. Több szempontot figyelembe véve, eredményeik szerint a kísérletekkel legjobb általános egyezést a  $G_0W_0@HSE$  módszer adta (HSE módszerrel számolt geometria, SOC figyelembe vétele,  $G_0W_0$  lépés a HSE06-ból kapott állapotokat használja). Többek között azt találták, hogy egy (SOC nélküli) HSE sáv szerkezethez képest a  $G_0W_0$  lépés még kb 0.65 eV-vel növelte meg a tiltott sáv értékét a  $K$ -pontban.

2. “A 3. fejezet 41. oldalán csoportelméleti módszerekkel levezeti, hogy az egyes sávokat a szimmetria szerint csoportosítva az egyes sávok milyen konkrét atomi pályák lineáris kombinációjából származhatnak, és a lineáris kombináció együtthatója spin-pálya csatolás erősségétől. Ugyanakkor pl. DFT számításokat használva egy konkrét funkcionállal spin-pálya kölcsönhatást is figyelembe véve ezek a lineáris kombinációs paraméterek kiolvashatóak az atomi pályákra való projekcióoperátorral. Érdekes módon az atomi pályák lineáris kombinációs kifejtését a 4. fejezet 46. oldalán tárgyalja nagy részletességgel. Véleményem szerint ezt el lehetett volna végezni a 3. fejezetben tárgyalt háromrétegű grafén esetére, ahol a DFT elektronszerkezetre való illesztés és a DFT számításban kapott projekció eredményeknek konzisztenciát kellene mutatnia. Ez várhatóan az eredményeket nem befolyásolta volna a fizikailag helyes paraméterhalmaz kikényszerítése mellett, csak a sokparaméterű illesztés kezdeti paramétereit tudná jól beállítani.”

A harmadik és a negyedik fejezet valóban hasonló gondolatmenet szerint épül fel: először szimmetria elvek felhasználásával definiálunk alkalmas bázisfüggvényeket, majd ezek segítségével meghatározzuk a rendszer sáv szerkeztének bizonyos jellemzőit. A harmadik fejezetben ezek a számolások az ABC rétegsorrendű háromrétegű grafénra történnek, míg a negyedik fejezetben az egyrétegű átmenetifém dikalkogenidekre (TMDC-re).

A harmadik fejezetben bemutatott eredményekre vezető munkában nem működtem együtt DFT számolásokat végző csoporttal és én magam sem végeztem ilyen számolásokat. Ez az egyik oka annak, hogy a harmadik fejezetben nem követtük a Bíráló által javasolt módszert. A másik ok az, hogy a DFT számolások felhasználása kevésbé tűnt fontosnak a grafén rendszer esetén, mint az egyrétegű TMDC esetén. A grafén esetén korábbi munkákból ismert volt, hogy sáv szerkezet jól leírható az atomi  $p_z$  pályákon alapuló szoros kötésű közelítés módszerrel, a spin-pálya csatolás tanulmányozására, amely egy kis perturbáció, ehhez még az atomi  $d$  pályák szükségesek<sup>4,5</sup>. Ez pedig elegendő információ volt a bázisfüggvények megkonstruálásához.

Az egyrétegű TMDC-ben viszont az egyes atomi pályák súlya a sávokban jelentősen változik a Brillouin zóna különböző pontjaiban, mint ahogy az a dolgozat 4.1 ábráján is látható. Ilyen szempontból a helyzet jóval bonyolultabb, mint a grafén rendszerek esetén, és az atomi pályák súlyát könnyebb volt sűrűségfüggvény számolásokból kinyerni. Az egyes sávok hullámfüggvényének atomi pályákra való projekciója lehetővé tette a sávok szimmetriájának meghatározását, amelynek a szisztematikus tárgyalása abban az időben nem volt elérhető az irodalomban. Ez pedig elengedhetetlen volt a Brillouin zóna egyes magas szimmetriájú pontjaiban érvényes  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  modellek felírásához, ami a munka egyik fő célja volt.

- 
- <sup>1</sup> A. Kormányos, G. Burkard, M. Gmitra, J. Fabian, V. Zólyomi, N. D. Drummond, and V. I. Fal'ko,  *$\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  theory for two-dimensional transition metal dichalcogenide semiconductors*, 2D Materials **2**, 022001 (2015).
- <sup>2</sup> A. Kormányos, V. Zólyomi, N. D. Drummond, P. Rakytá, G. Burkard, and V. I. Fal'ko, *Monolayer MoS<sub>2</sub> : Trigonal warping, the  $\Gamma$  valley, and spin-orbit coupling effects*. Phys. Rev B **88**, 045416 (2013).
- <sup>3</sup> R. R. Pela, C. Vona, S. Lubeck, B. Alex, I. G. Oliva, and C. Draxl, *Electronic structure of MoS<sub>2</sub> revisited: a comprehensive assessment of G<sub>0</sub>W<sub>0</sub> calculations*, arXiv:2310.04198
- <sup>4</sup> S. Kunschuh, M. Gmitra, and J. Fabian, *Tight-binding theory of the spin-orbit coupling in graphene*, Phys. Rev. B **82**, 245412 (2010).
- <sup>5</sup> S. Kunschuh, M. Gmitra, D. Kochan, and J. Fabian, *Theory of spin-orbit coupling in bilayer graphene*, Phys. Rev. B **85**, 115423 (2012).

Budapest, 2024. január 22.

Kormányos Andor