

Opponensi vélemény

Osváth Zoltán

Grafén alapú hibrid nanoszerkezetek kialakítása és jellemzése

című értekezéséről, amit az MTA doktora fokozat elnyeréséhez nyújtott be.

1. Általános szempontok

Meg kell állapítani, hogy a dolgozat egy önálló mű, nem cikkek fordítása, összefűzése, hanem nagyon jól olvasható szabályos felépítésű, jól érthető esszék sorozata. Örömmre szolgált, hogy néhány általam nem tisztán értett, vagy ismert problémát sikerül a dolgozat segítségével megértenem. Osváth Zoltán mind elméleti mind kísérleti területen is igen nagy biztonsággal mozog. Ez abból is következik, hogy karrierjét egy olyan méltán világhíres kutatócsoportban építi, ahol szerényebb eredményekkel nem tudna megmaradni. A kutatóhely ahol a pályázó dolgozik egy világszínvonalú műhely, így nem kérdéses, hogy a témaválasztás mindenképpen fontos és hézagpótló. A doktori mű kompaktsága és részleteiben kiemelkedő alapossága jelentős kihívást jelent a tárgykörben kevésbé járatos bíráló számára.

Osváth Zoltán doktori értekezésének téziseit áttekintve megállapítható, hogy a dolgozat magas színvonalú, jól strukturált és világos módon mutatja be a szerző több mint egy évtizedes kutatómunkáját a grafén alapú hibrid nanoszerkezetek területén. Az értekezésben számos új tudományos eredmény szerepel, amelyek egyaránt jelentenek hozzájárulást a grafén alapú kutatásához (Moiré-szuperstrukturák, Umklapp-szórás, STM/AFM mechanikai vizsgálatok), valamint a plazmonikus és érzékelési alkalmazásokhoz. A tézisfüzet jól tükrözi a szerző kísérleti precizitását és a témában szerzett széleskörű tapasztalatát.

1. Áttekintő szakmai értékelés

A benyújtott doktori értekezés témája különböző grafén hibrid nanoszerkezetek kialakítása és vizsgálata, valamint ezek alkalmazhatósága. A dolgozat 111 oldalban foglalja össze az eredményeket. A bevezetés (1. fejezet) alapos, terjedelmében mértéktartó és konkrétan megfogalmazza a kutatás céljait. A következő (2. fejezet) összefoglalja a terület irodalmát, ami szinte sorvezetőként segíti a területen nem szakavatott bíráló/olvasó munkáját. A harmadik fejezetben a főbb vizsgálati módszerek szinte tankönyvi leírását találjuk. Ezt követi a z eredményeket tartalmazó negyedik fejezet. Ebben a kutatási eredményeket 63 oldalon, 7 alfejezetben foglalja össze. A dolgozat végén találjuk a téziseket, melyeket a tézisfüzet is tartalmaz. A művet a rövidítések jegyzéke és a 207 szakirodalmi hivatkozásból álló irodalomjegyzék zárja. A szerkesztés tetszetős, az ábrák megfelelően támasztják alá a szöveges mondanivalót. A nyelvi megformálás igen jól sikerült, a szöveg –olykor igen nehéz szakmai mondanivalója ellenére– könnyen értelmezhető. Elütést gyakorlatilag nem találni a szövegben. A dolgozat olvasásában csak néhány ábra vagy ezek belső jelzéseinek viszonylag kis mérete okoz gondot, de mindez betudható annak, hogy ezek valószínűleg közleményekből kerültek változatlan formában átemelésre.

A tézisek 15 közleményre épülnek, melyekből a jelölt 7-nek első, 8-nak utolsó szerzője. A közlemények a tézisek állításainak megalapozására alkalmasak. A közlemények megjelenési helye az adott terület szakirodalmát tekintve releváns. Teljes munkásságát illetően az MTMT adatbázisa szerint 101 lektorált folyóiratban megjelent közleménye van, melyekre összesen 2833 hivatkozást kapott. Független hivatkozásaiból számolt h-indexe 23. A szakterület

szakirodalmának alapos feldolgozását a Jelölt láthatóan elvégezte, és a nem saját hivatkozások adatait is bőségesen felhasználta a kapott eredmények elemzéséhez.

1. A doktori mű elemzése fő fejezetek és tézisek szerint

1.1. Grafénpöttyök kialakítása termikus oxidációval

Kémiai módszerrel alakított ki egymásra rétegezett grafénlapkákat, melyet levegőben sorozatos hőkezelésnek vetett alá. A termikus oxidációs sorozat során a minták felülete tisztult, valamint a lapkák egy-két rétegből álló grafén szemcsékké alakultak. A legutolsó hőkezelés során mindkét irányban néhányszor 10nm méretű ún. grafénpöttyöket hozott létre. STS mérésekkel kísérletileg kimutatta, hogy ebben a mérettartományban megváltozik a grafén állapotsűrűsége, többlet elektronállapotok jönnek létre.

Kérdés:

- A szerző a $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ R30° szuperstruktúrákat az elektronok völgyközi szórásával, illetve Umklapp-szórással magyarázza. Miért tekinthető az Umklapp-szórás kulcsfontosságúnak a grafén-pöttyök elektronikus állapotsűrűségében és milyen közvetlen hatással van ez a vezetőképességre és/vagy a sávszerkezetre?

1.2. Kis elforgatási szögű grafén/HOPG nanoszerkezet jellemzése

HOPG-ra transzferált grafénlemezek STM vizsgálata során tanulmányozta a kialakult Moiré szerkezeteket. A reguláris szuperszerkezetek mellett, anizotróp Moiré struktúrákat is megfigyelt, melynek leírásához ún. merev rács Fourier-módszert dolgozott ki, melynek eredményeképpen a kialakult mintázatot a grafén rácsparaméterének lokális változásával magyarázta. Kísérletileg kimutatta, hogy a moiré-mintázat STM-el mért magasnak látszó pontjai valójában nem topográfiai kiemelkedések, hanem többnyire a lokális töltés-lokalizációból származnak.

Kérdés:

-Megmutatta, hogy összefüggés van a Moiré-szuperstruktúra periódusának változása és a grafén lokális állapotsűrűsége közt. Milyen gyakorlati alkalmazásokban lehet releváns ez a jelenség?

1.3. Grafén/Au(111) hibrid nanoszerkezetek előállítása HOPG-hordozón

Au nanorészecskéket hozott létre, melyekre CVD-grafént transzferált. A rendszert hőkezelve megfigyelte, hogy a grafénnal fedett Au-nanoszigeteken Au(111) irányú felületek alakultak ki, ellenben a fedetlen tartományokon nem történt ilyen textúra. Az így kialakított grafén/Au(111)-felületeken anomálishan nagy Moiré-szuperstruktúrákat talált, megjelenésüket két anyag rácsparaméterének egyidejű torzulásával magyarázta. Spektroszkópiai módszerrel azt is kimutatta, hogy a grafénnal fedett tartományokon másodlagos Dirac-pontok alakultak ki a grafén elektronszerkezetében. A mérések során ezek energiáit is meghatározta, valamint megállapította, hogy azok fordítottan arányosan változnak a Moiré periódussal.

1.4. Nanoindentáció grafénbuborékokon és felfüggesztett grafénon

Az Au-grafén hibrid nanoszerkezetek kialakítása során spontán keletkezett grafén nanobuborékokat és az Au részecskék között felfüggesztett grafén membránokon végzett összehasonlító nanoindentációs méréseket STM-el és AFM-el. Megmutatta, hogy megfelelő előfeszítéssel az STM-el is elérhető az AFM-el végzett mérések során

használt tipikus 20nN-os erőhatás.

Kérdés:

A szerző összehasonlító AFM- és STM-nanoindentációt végzett grafén-buborékokon. Milyen előnyei és korlátai vannak az STM-tű mechanikai erőhatásainak becslésében a klasszikus AFM-mérésekhez képest a felfüggesztett grafén vizsgálata során?

1.5. Hullámos szerkezetű grafén előállítása

Tervezetten alakított ki hullámos szerkezetű, ún. gyűrt grafént SiO_2 , illetve Au nanorészecskéken. AFM-mérésekkel megmutatta, hogy különbség van a nanorészecskét fedő és a felfüggesztett grafén rétegek között. Megállapította, hogy hőkezelés hatására változik a grafén rétegben ébredő mechanikai feszültség. 'Peak Force' üzemmódba vizsgálta a réteg adhéziójának topográfiától való függését is.

Hasonló méréseket végzett félgömb alakú Au nanorészecskéken is, ahol a Raman-spektroszkópiai vizsgálatok során használt lézer teljesítményének növelésével lokális hőkezelést végzett. Kimutatta, hogy az Au részecskéken végzett kísérletek során a SiO_2 -részecskékkal ellentétben a grafén réteg nem károsodott. Periodikusan görbült szerkezetű grafént készített, melyben megmutatta, hogy a grafén szerkezeti hullámossága a nanorészecskék által meghatározott periódushoz hangolható kis dózisu Ar^+ ionos besugárzással. A besugárzás hatását STM és Raman-spektroszkópiai eljárással vizsgálta.

Kérdés:

-A dolgozatban több helyen szerepel az ún. Peak Force üzemmód. A 3. fejezetben bemutatja ezt az analitikai módszert. Arra kérem, ismertesse részletesebben ezt a vizsgálati módszert!

-Láttuk, hogy Ar^+ ionos besugárzással hangolható a grafén hullámossága. Hogyan értelmezhető a grafén kristályos szerkezetének doménméret-csökkenése a Raman-mérések alapján, és milyen összefüggés van a szerkezeti hibák és az optikai válasz között?

1.6. A grafén, mint stabilizáló- és védőbevonat

HOPG-hordozón kialakított, grafénnal fedett ón és ezüst nanorészecskék különböző mikroszkópos és spektroszkópiai vizsgálatával kimutatta, hogy a grafén megakadályozza a nanorészecskék teljes oxidációját. Az Sn esetében a fedett tartományokon vegyes Sn/SnO vegyes fázis alakul ki, míg a grafénnal fedett Ag nanorészecskék hosszú idő után sem szulfidálódnak, azokon ilyen hosszú idő után is mérhető marad a lokális felületi plazmon rezonancia. A csúcsok ez idő alatt a fedetlenül maradt Ag részecskék szulfidálódása miatt tolódnak el.

Grafénnal fedett Au nanorészecskék LSPR eltolódását vizsgálta különböző koncentrációjú gőzök és gázok jelenlétében. Megállapította, hogy a részecskékre vitt grafén réteg jelentősen és szelektíven befolyásolja a rendszer optikai válaszát. A minták egy részét oxigén plazmában kezelve hibahelyeket hozott létre a fedő grafén rétegben, aminek hatására bizonyos szerves anyagok esetén megnövekedett a gázérzékelés érzékenysége.

A grafénnal fedett Ag és Au nanorészecskék stabilitása és plazmonikus tulajdonságai

több kísérletben is bemutatásra kerülnek.

Kérdés:

-Milyen szerepet játszik a grafén réteg vastagsága és hibasűrűsége a plazmonrezonancia hosszú távú stabilitásában és a gőzérzékelési szelektivitásban?

-A grafént immár két évtizede ígéretes anyagként tartják számon, ugyanakkor ipari szintű alkalmazása csak nagyon lassan körvonalazódik. Hogyan látja, milyen területeken van reális esély arra, hogy a grafén (illetve a grafén alapú hibrid nanoszerkezetek) szélesebb körben elérhető, ipari szintű alkalmazásokat nyerjenek a közeljövőben?

Osváth Zoltán régóta a grafénnel kapcsolatos kutatások résztvevője és alakítója. A területen komoly elismertséget szerzett és munkáit jól hivatkozzák. Ezekből a munkákból egy elegáns, igen jól olvasható dolgozatot írt. Az értekezést kiemelkedő színvonalúnak tartom, a tézisekben foglalt állításokat elfogadom. Mindezek alapján az MTA doktora fokozatra alkalmasnak találom, a nyilvános védés kitűzését javaslom, és a fokozat odaítélését melegen támogatom.

Debrecen, 2025 szeptember 30.



Cserháti Csaba