

# Válasz a bírálói kérdésekre – Nemes-Incze Péter

Fülöp Bálint

October 6, 2022

Köszönöm szépen Nemes-Incze Péternek, hogy vette a doktori disszertációm bírálatával járó fáradságot. Az alábbiakban minden kérdésre alcímenként válaszolok.

## NIP.1.

*Miért fontos BiTeI-ből egyréteget előállítani? A 4. fejezet bevezetőjéből nem teljesen világos nekem, hogy miért is lenne érdemes ezzel bajlódni. Végül a Rashba spin-pálya kölcsönhatás tárgyalása során bukkan fel a motiváció, az irodalomra hivatkozva. Ezután továbbra is valamelyest ködös marad a motiváció, ha csak el nem olvasom a hivatkozott cikkeket. Megérdemelt volna ez a téma egy jóval részletesebb motivációt. Ennek hiányában nem teljesen áll össze a kép. Pl. egyrétegben a Rashba-paraméter kb. a harmada a „bulk” értéknek. Ez jó nekünk, vagy nem? Többréteget is be lehet integrálni heteroszerkezetekbe, mint pl. BiTeBr esetében,<sup>1</sup> ebben az esetben mi lenne az előnye az egyrétegnek? Ezek fontos kérdések, amelyekre érdemes választ adni expliciten kifejtve. Az is helyénvaló motiváció, hogy „csináljuk meg és majd kiderül”, de ezt érdemes leírni.*

A BiTeI kristály levékonyításának több motivációja is van. Ha elég vékony kristályt (nem feltétlenül egy réteget) sikerül előállítanunk, akkor elektrosztatikus potenciál (tipikusan egy lokális kapu elektróda) segítségével hangolhatóvá válik benne a kémiai potenciál.

Számolások szerint az SL BiTeI grafénra rétegezve jelentősen befolyásolja annak sávszerkezetét, és a rendszer akár topologikus fázisba hozható,<sup>2-6</sup> de két, egymásra fordított SL BiTeI szintén mutat topologikus tulajdonságokat.<sup>7,8</sup> Egy topologikus szigetelőre téve Dirac–Rashba hibrid szerkezetek várhatóak.<sup>9</sup>

Ugyan a számolás szerint az SL BiTeI-ben a Rashba-kölcsönhatást jellemző  $E_R$  mennyiség mintegy a harmada a tömbi értéknek, de ez még mindig nagyon nagy, így a spin-pálya kölcsönhatás (SOC) továbbra is jelentős az anyagban.

Végül, az SL BiTeI további előnye, hogy úgy lehet heterostruktúrákba integrálni, hogy „nem lóg ki”, így a kérdésben idézett cikk<sup>1</sup> esetében is lehetővé válna a struktúra védelme egy felső hBN réteg segítségével, ami megnyitja az utat a nyomáscellában végzett mérések előtt.

## NIP.2.

*Mágneses térben csak elektron-elektron kölcsönhatások tudják felhasítani a völgy degenerációt? (28. oldal)*

Az egyrétegű grafénban a Dirac-spektrum megjelenésének a forrása a grafén kétatomos bázisában az  $A$  és  $B$  atomok jelenléte, a két völgy degenerációja a két alrács közti ekvivalenciából következik. Amennyiben ezt az alrács szimmetriát megsértjük, a  $K-K'$  szimmetria is felhasad.<sup>10</sup> Ezt többféle módon is meg lehet tenni, például:

- A grafént kristálytanilag illesztett módon hBN-re rakva előbbi  $A$  és  $B$  atomi helyei eltérő környezetbe kerülnek, mert az alattuk lévő, rendre B és N atomok eltérnek egymástól.<sup>11</sup>

- A grafént rátehetjük egy olyan rétegre (pl. WSe<sub>2</sub>), amelyből valley–Zeeman kölcsönhatás öröklődhet át. Ezen kölcsönhatás ellentétes módon jelenik meg a két völgyben, ezáltal felhasítva a degenerációt.
- Lokális mechanikai deformáció torzíthatja a hatszögrácsot olyan módon, ami egy effektív mágneses térként jelenik meg az elektronok számára. Ezen mágneses tér ellentétes irányú a két völgyben, és a völgy degenerációt szintén felhasítja.

### NIP.3.

*A hőmérsékleti kiszélesedés véleményem szerint alá van becsülve (45. oldal). A szerző a termikus kiszélesedést  $kT$ -nek, azaz kb 26 meV-nak saccolja szobahőmérsékleten. Ez egy nagy alábecslésnek tűnik. A hőmérsékleti kiszélesedést a Fermi függvény kiszélesedésére vezetjük vissza. Különböző mérési módszerek esetén, empirikusan megállapítható, hogy hasonlóan kb.  $3kT$  körüli egy Dirac delta állapot energiabeli kiszélesedésének a félértékszélessége. Lásd pl. STM<sup>12</sup> és ARPES<sup>13</sup> esetében. Töltéstranszport mérésekben nem vagyok annyira jártas, de 1D vezető csatornák elmosódása is akkor következik be, ha a szintek közötti energia felhasadás mértéke kb.  $4kT$ -vel összemérhető (lásd pl. QPC mérés: Thomas Ihn könyv 180. oldal). Miért használ ilyen alacsony értéket a tárgyalásban?*

Elismerem, hogy a megfogalmazás talán nem volt elég egyértelmű. A hivatkozott részlet a kísérletek technikai részleteinek leírásából való, ahol a lehető legtömörebben, mintegy mellékesen igyekeztem motiválni, hogy miért kell a mintát *egyáltalán* lehűteni, hiszen ez számos megkötést von maga után: mivel a  $kT$  energia meghatározó abban, hogy mit látunk a mérésekben, érdemes a hőmérsékletet 300 K-ról 3 K környékére csökkenteni (a mérések 4 K-en és 1.5 K-en történtek), hiszen százszor jobb felbontásunk lesz. Nem volt célom, hogy valamilyen éles megállapítást tegyek egy konkrét mérési helyzetről, mert az további részleteket igényelt volna, ami sem terjedelmében, sem fókuszában nem illett a környezetbe, mint ahogy pl. a hűtési rendszer is a lehető legtömörebben került említésre. De abban egyet értek, hogy egy adott energiakiszélesedéshez 3–4× ráhagyást érdemes venni a  $kT$  szorzathoz képest egy adott berendezés által biztosított hőmérsékleten, hogy az ember egyáltalán elkezdjen bizakodni, hogy a berendezésben látni fogja, amit keres.

### NIP.4.

*Egyrétegű, illetve vastagabb BiTeI kristályok felületén figyelt-e meg IBiTe — TeBiI rétegződési hibákat? Lásd pl. [14, 15]. Az ilyen rétegződési hibák egyes mintákban nagyságrendileg 100 nm-ként követik egymást.*

Érdekes felvetés, de nem vizsgáltam. Két megjegyzést szeretnék hozzáfűzni:

- A növesztési eljárás változtatásával ezen doménméretek megnövelhetők.<sup>16</sup>
- Mind a két hivatkozott cikkben nagy vákuumú (UHV) STM méréseket találunk, míg mi szabad levegőn mértünk. Nem lenne meglepő, ha ez negatívan befolyásolná egy esetleges hasonló mérés sikerességét.

### NIP.5.

*A 61. oldal alján levő szöveg és a 4.7-es ábra látszólag ellentmondásban van egymással. A szöveg azt állítja, hogy a számolt PDOS összhangban van a  $dI/dV$  méréssel. Az ábra alapján ez azonnal látható, hogy nem igaz. A PDOS a  $-0.5/0.5$  eV tartományban növekedő értékkel rendelkezik, míg a  $dI/dV$   $-0.5$ -ről  $0$  V feszültségig csökken, majd újra növekedik  $0.5$  V-ig. Ez a moduláció jóval nagyobb, mint az ábrán látható hibahatár. Kérem ezt az ellentmondást feloldani.*

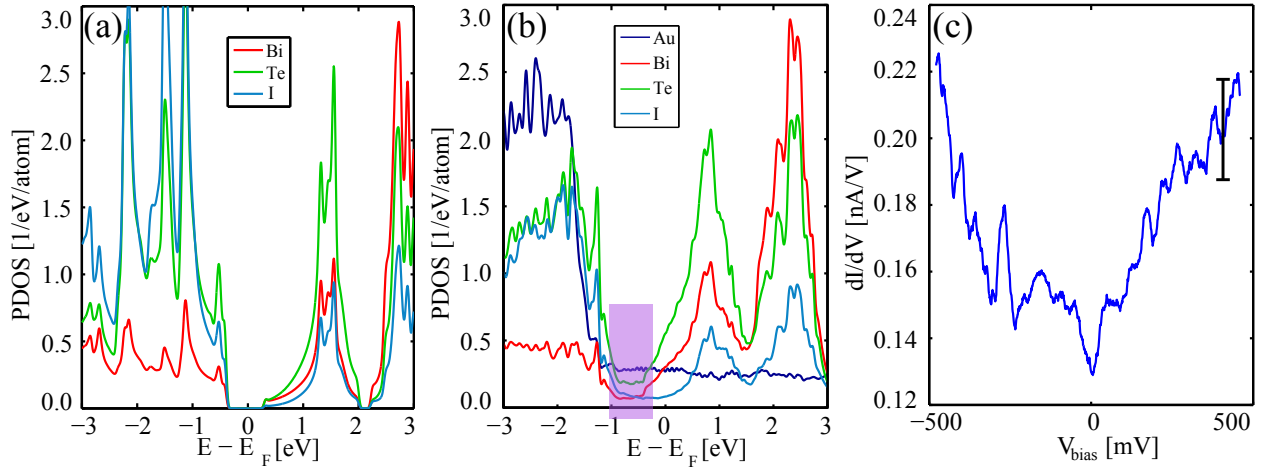


Figure 1: A disszertáció 4.7-es ábrája. (a) A szabadon álló BiTeI PDOS diagramja. (b) Az Au/BiTeI rendszer PDOS diagramja. A lila kijelölés mutatja a kísérletileg vizsgált tartományt. (c) A mért STS görbe egy példája.

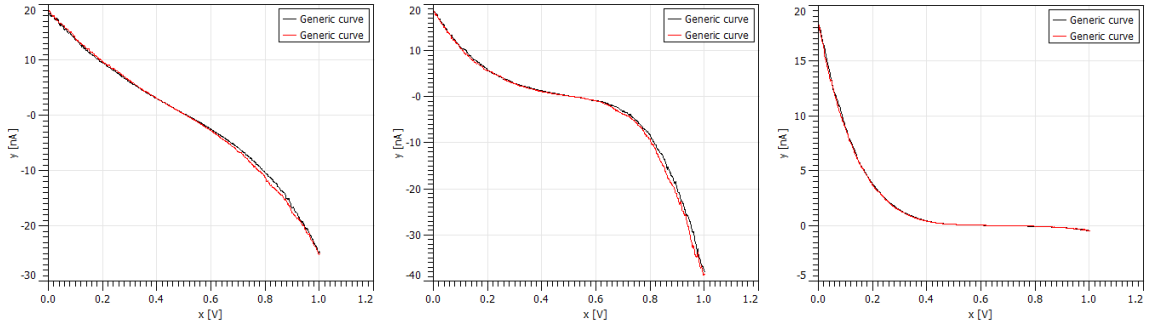


Figure 2: Összehasonlító ábra a három felületen mért STS görbékéből. Balról jobbra: arany, egyrétegű BiTeI, tömbi BiTeI. A középső panel deriváltja szerepelt a 1c panelen.

Az elméleti számolást végző társszerzőink (Tajkov Zoltán, Koltai János, Oroszlány László, ELTE) elmondása alapján az eredmények magyarázásakor figyelembe kell vennünk, hogy a Fermi-energia meghatározása a számolásokban elég nagy hibával tehető csak meg, és felhívták a figyelmünket arra, hogy azt ne tartsuk mérvadónak.

Amennyiben a Fermi-szint a tiltott sáv maradványában található, mint ahogy azt a 1b panelen a lila kiemelés mutatja, a c panelen bemutatott  $dI/dV$  görbe teljesen érthetővé válik: középen, azaz előfeszítés nélkül a görbe nem éri el a zérust, ami összhangban áll a véges PDOS értékekkel. Ez eltér a tömbi BiTeI felülete végzett méréstől, ahol a legalacsonyabb érték mintegy huszoda volt az itt mértnek. Összehasonlítóképp mutatok egy-egy tipikus  $I/V$  görbét a három felületen a 2. ábrán.

## NIP.6.

### *Az arany hordozó hogyan befolyásolja az egyréteg BiTeI Rashba paraméterét?*

A 3. ábrán látható a társszerzőink számolása, amely az Au/BiTeI hibrid rendszer sávszerkezetét mutatja. Az ábra színezése az állapotok térbeli kiterjedését reprezentálja: a sárgával jelölt állapotok főként az arany atomokon ülnek, a pirossal jelöltek a BiTeI-re vannak koncentrálnak, a zöld állapotok mindkét régióra

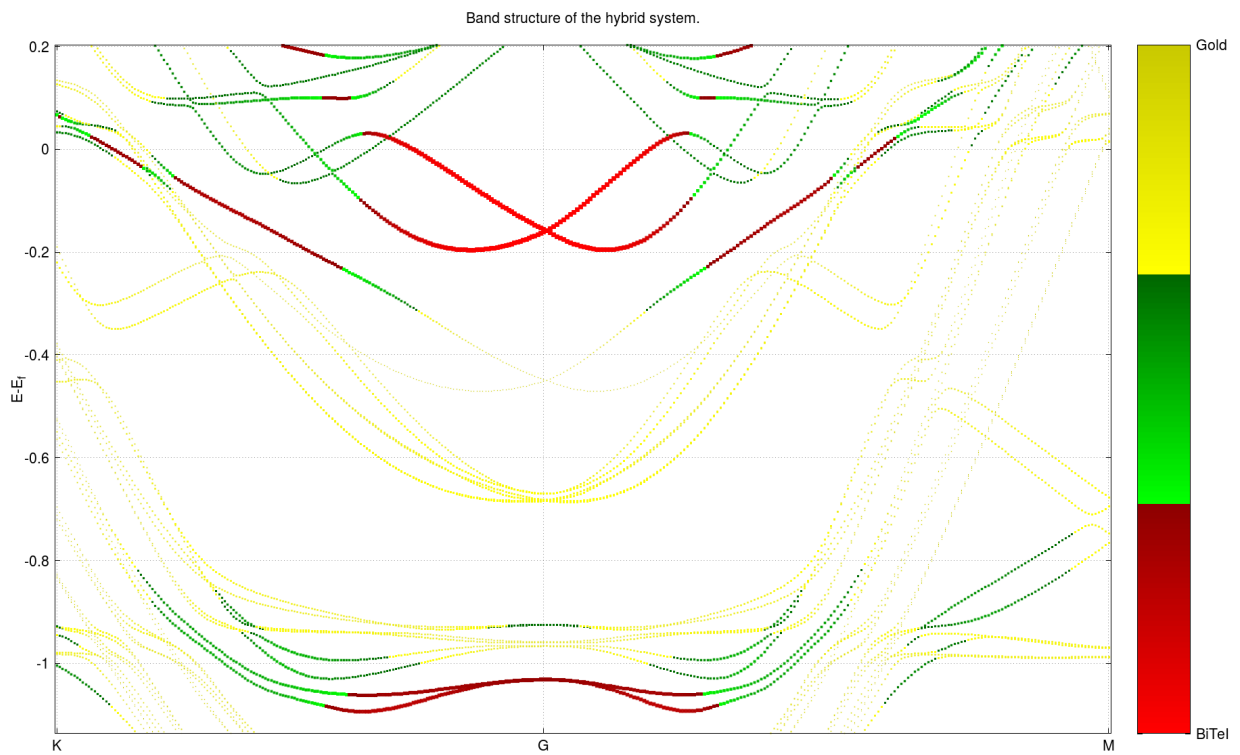


Figure 3: A BiTeI/Au hibrid szerkezet sávszerkezete a K–G–M vonal mentén. A színezés jelöli az adott állapot súlyának valós térbeli eloszlását. A sárgával jelölt állapotok az aranyra, a pirossal jelöltek a BiTeI-re vannak koncentrálnva, a zöld állapotok mindkét régióra kiterjednek.

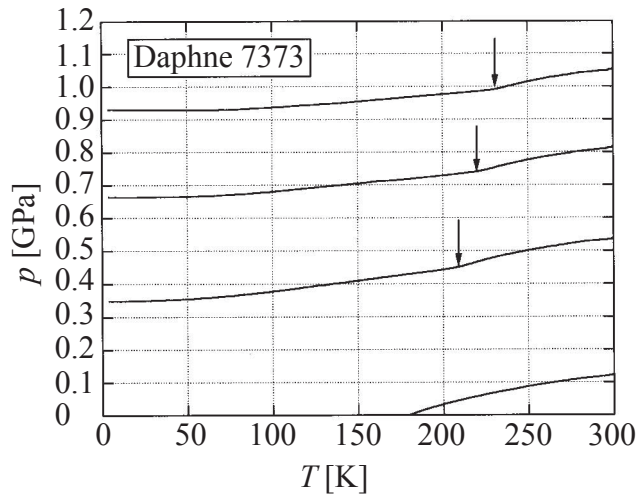


Figure 4: (a) A nyomásközvetítő közegként használt *Daphne 7373* típusú kerozinban végbemenő nyomáscsökkenés a cella hűtése során. A nyilak mutatják a kerozin fagyáspontját az egyes görbéken. Forrás: Ref. 17. (b) A nyomásráadásnál használt prés.

kiterjednek. Azt láthatjuk az ábrán, hogy a BiTeI sávszerkezete lényegében érintetlen marad a G pont környékén, a Rasba-kölcsönhatás mértéke sem változik érdemben, csupán a tiltott sávban jelennek meg az arany állapotai.

## NIP.7.

*A nyomáscellában levő nyomást hogyan kalibrálták? Honnan lehet tudni, hogy a cella belsejében, a mintánál valóban 1.8 GPa nyomás van? Van valamilyen minta, amelynek a viselkedését ismerjük ebben a hidrosztatikus nyomás tartományban? Mekkora a nyomás értékek hibája (pl. a 7.7 ábrán)?*

A nyomásközvetítő közegként a *Daphne 7373* típusú kerozint használtuk. Ez a keverék kifejezetten kriogenikus hidrosztatikai kísérletekre lett tervezve, a fejlesztés az általunk használt nyomáscellával azonos felépítésűben történt, és az ebből született publikáció részletesen vizsgálja ennek a folyadéknak a tulajdonságait.<sup>17</sup> Ezen olaj több hasznos tulajdonsággal is rendelkezik erre a célra, amelyeket a disszertációmban fejtegetek, most csak a 4a ábrát mutatom.

Ezen a kerozinban végbemenő nyomáscsökkenés látható a cella hűtése során különböző kezdeti (szobahőmérsékleti) nyomások esetén. Mint látható, a nyomáscsökkenés a 0.1–0.2 GPa tartományban marad, és egyre nagyobb kezdeti nyomás esetén egyre csökken ez az érték. Az eredeti cikkben InSb alapú nyomásszenzort használtak, amelynek a nyomásfüggő ellenállását mérték a hűtés közben.

A szobahőmérsékleti nyomást a használt prés nyomásmérőjével mértük (lásd 4b kép), amit a geometriai elrendezés okán 150-nel szoroztunk. Ezt az értéket tekintettük a minta nyomásának minden esetben. A „valós” nyomás ennél maximum kb. 0.1 GPa-lal kevesebb lehet, ami kevesebb, mint 10% hibát jelent. A nyomás pontos értékét nem kalibráltuk, mert a dolgozatom a nyomáscellás kutatásaink egy kezdeti szakaszát jelenti, itt arra voltunk kíváncsiak, egyáltalán látunk-e változást a nyomás hatására, amit sikerült kimutatnom. A kutatás jelen fázisában legtöbbször csak légköri és maximális nyomásokon végezzük a méréseket, és kvalitatív eltérést keresünk.

## NIP.8.

*A kerozin miért dőpolja a grafént? Nem apoláros szénhidrogének alkotják? Ezeknek általában távol van a HOMO, LUMO szintjük a grafén Fermi nívótól, emiatt várhatóan elenyésző a töltéstranszfer.*

A fedetlen grafén mintákat kerozinba merítve a grafén teljesen elszennyeződött, annak mobilitása olyan mértékben romlott, hogy használhatatlan lett a minta. Nem vizsgáltuk részletesen, hogy hogyan támadja meg az anyag a mintát, hanem a hBN-es fedésre koncentráltunk, ami a továbblépést lehetővé tette.

A töltésemlegességi pont eltolódása amúgy lehet valamilyen beépült tér eredménye is. Kerozin közeg hiányában is elő tud fordulni, hogy ugyanazon mintát egymás után lehűtve némi mozgás figyelhető meg a töltésemlegességi pont helyében, még akkor is, ha a mobilitás amúgy lényegesen nem változik, és ezt szokás eltolással korrigálni.

## NIP.9.

*A hidrosztatikus nyomásnak milyen hatása van az 1D élkontaktusokra?*

Nem vizsgáltam behatóan, mert nem láttunk érdemi hatást a méréseinkre. A kontaktus ellenállás értéke jellemzően csekély mértékben változik. Jellemzően növekszik az ellenállás, tipikusan néhány százalékkal.

## NIP.10.

*A grafén mintában levő mechanikai deformáció miatt kialakuló pszeudomágneses tér milyen hatással lenne a WL/WAL mérésekre? Ez is egy jelentős effektus, ami megváltoztatja a töltéshordozók fázisát.*

Ez egy fontos kérdés, mert az összetétel során óhatatlanul is kerül mechanikai torzulás a kristályba. Ennek hatását fedetlen grafén/hBN rendszeren részletesen tanulmányoztak már,<sup>18</sup> és ott azt találták, hogy a deformáció okozta szórás a domináns abban a rendszerben, ez limitálja a mobilitást.

A pszeudomágneses tér az időtükrözési invariancia feltöréséhez vezet, ami a gyenge lokalizációs mérésnél a disszertációmban a völgyön belüli szórás (*intra-valley*,  $\tau_{ia}$ ) időállandóján keresztül volt számításba véve. Amennyiben túlságosan erős ez a hatás, az a gyenge lokalizációs jel teljes eltűnéséhez vezethet, mint azt kezdeti (SiO<sub>2</sub> szubsztrátra épített) grafén minták esetében látták.<sup>19</sup>

## References

- [1] Z. Kovács-Krausz, A. M. Hoque, P. Makk, B. Szentpéteri, M. Kocsis, B. Fülöp, M. V. Yakushev, T. V. Kuznetsova, O. E. Tereshchenko, K. A. Kokh, I. E. Lukács, T. Taniguchi, K. Watanabe, S. P. Dash, and S. Csonka, Electrically Controlled Spin Injection from Giant Rashba Spin-Orbit Conductor BiTeBr Nano Lett., vol. 20, pp. 4782–4791, July 2020.
- [2] S. V. Eremeev, I. A. Nechaev, P. M. Echenique, and E. V. Chulkov, Spin-helical Dirac states in graphene induced by polar-substrate surfaces with giant spin-orbit interaction: a new platform for spintronics Sci. Rep., vol. 4, p. 6900, Nov. 2014.
- [3] L. Kou, S.-C. Wu, C. Felser, T. Frauenheim, C. Chen, and B. Yan, Robust 2D Topological Insulators in van der Waals Heterostructures ACS Nano, vol. 8, no. 10, pp. 10448–10454, 2014. PMID: 25226453.
- [4] Z. Tajkov, D. Visontai, P. Rakyta, L. Oroszlány, and J. Koltai, Transport Properties of Graphene-BiTeI Hybrid Structures Physica Status Solidi C, pp. 1700215–n/a, 2017. 1700215.

- [5] Z. Tajkov, D. Visontai, L. Oroszlány, and J. Koltai, Uniaxial strain induced topological phase transition in bismuth–tellurohalide–graphene heterostructures Nanoscale, vol. 11, pp. 12704–12711, 2019.
- [6] Z. Tajkov, D. Visontai, L. Oroszlány, and J. Koltai, Topological Phase Diagram of BiTeX–Graphene Hybrid Structures Applied Sciences, vol. 9, no. 20, 2019.
- [7] I. A. Nechaev, S. V. Eremeev, E. E. Krasovskii, P. M. Echenique, and E. V. Chulkov, Quantum spin Hall insulators in centrosymmetric thin films composed from topologically trivial BiTeI trilayers Sci. Rep., vol. 7, p. 43666, Mar. 2017.
- [8] S. V. Eremeev, I. A. Nechaev, and E. V. Chulkov, Two- and three-dimensional topological phases in BiTeX compounds Phys. Rev. B, vol. 96, p. 155309, Oct. 2017.
- [9] S. V. Eremeev, S. S. Tsirkin, I. A. Nechaev, P. M. Echenique, and E. V. Chulkov, New generation of two-dimensional spintronic systems realized by coupling of Rashba and Dirac fermions Sci. Rep., vol. 5, p. 12819, Aug. 2015.
- [10] A. H. Castro Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov, and A. K. Geim, The electronic properties of graphene Rev. Mod. Phys., vol. 81, pp. 109–162, Jan 2009.
- [11] N. M. Freitag, T. Reisch, L. A. Chizhova, P. Nemes-Incze, C. Holl, C. R. Woods, R. V. Gorbachev, Y. Cao, A. K. Geim, K. S. Novoselov, J. Burgdörfer, F. Libisch, and M. Morgenstern, Large tunable valley splitting in edge-free graphene quantum dots on boron nitride Nature Nanotechnology, vol. 13, pp. 392–397, May 2018.
- [12] M. Morgenstern, Scanning tunneling microscopy and spectroscopy of graphene on insulating substrates physica status solidi (b), vol. 248, no. 11, pp. 2423–2434, 2011.
- [13] G. Levy, W. Nettke, B. M. Ludbrook, C. N. Veenstra, and A. Damascelli, Deconstruction of resolution effects in angle-resolved photoemission Phys. Rev. B, vol. 90, p. 045150, Jul 2014.
- [14] C. Tournier-Colletta, G. Autès, B. Kierren, P. Bugnon, H. Berger, Y. Fagot-Revurat, O. V. Yazyev, M. Grioni, and D. Malterre, Atomic and electronic structure of a Rashba  $p - -n$  junction at the BiTeI surface Phys. Rev. B, vol. 89, p. 085402, Feb 2014.
- [15] S. Fiedler, L. El-Kareh, S. V. Eremeev, O. E. Tereshchenko, C. Seibel, P. Lutz, K. A. Kokh, E. V. Chulkov, T. V. Kuznetsova, V. I. Grebennikov, H. Bentmann, M. Bode, and F. Reinert, Defect and structural imperfection effects on the electronic properties of BiTeI surfaces New J. Phys., vol. 16, no. 7, p. 075013, 2014.
- [16] Y. Kohsaka, M. Kanou, H. Takagi, T. Hanaguri, and T. Sasagawa, Imaging ambipolar two-dimensional carriers induced by the spontaneous electric polarization of a polar semiconductor BiTeI Phys. Rev. B, vol. 91, p. 245312, Jun 2015.
- [17] K. Yokogawa, K. Murata, H. Yoshino, and S. Aoyama, Solidification of High-Pressure Medium Daphne 7373 Japanese Journal of Applied Physics, vol. 46, pp. 3636–3639, June 2007.
- [18] N. J. G. Couto, D. Costanzo, S. Engels, D.-K. Ki, K. Watanabe, T. Taniguchi, C. Stampfer, F. Guinea, and A. F. Morpurgo, Random Strain Fluctuations as Dominant Disorder Source for High-Quality On-Substrate Graphene Devices Phys. Rev. X, vol. 4, p. 041019, Oct 2014.
- [19] A. F. Morpurgo and F. Guinea, Intervalley Scattering, Long-Range Disorder, and Effective Time-Reversal Symmetry Breaking in Graphene Phys. Rev. Lett., vol. 97, p. 196804, Nov 2006.