



*A h-BN nanoháló alkalmazása molekulaadszorpciós és  
fémkatalizált folyamatokban*

Doktori (Ph. D.) értekezés tézisei

**Szitás Ádám**

**TÉMAVEZETŐK:**

**Prof. Dr. Kónya Zoltán**

*egyetemi tanár*

**Dr. Farkas Arnold Péter**

*tudományos munkatárs*

**SZEGEDI TUDOMÁNYEGYETEM**

**Természettudományi és Informatikai Kar**

**Kémia Doktori Iskola**

**2021**

## I. Bevezetés, célkitűzések

A huszadik század második felében jelentősen átalakult a vegyipar területén uralkodó általános szemléletmód. A termékek nagy mennyiségben történő előállításán túl előtérbe került a szelektivitás fontossága, a melléktermékek számára és azok mennyiségére vonatkozó tervezhetőség iránti igény, illetve fokozott figyelmet kapott az adott technológia környezetre gyakorolt hatása is. Ennek eredményeként megszületett az elvárás a különböző vegyipari folyamatok alapos megismerésére annak érdekében, hogy a lehető legnagyobb mértékben szabályozhatóvá és tervezhetővé váljanak a vegyipari eljárások. A vizsgálati módszertan egyik iránya az ún. bottom-up technika, ahol ultravákuum körülmények között, tiszta egykristályokra alapozva összetettebb, több komponenset tartalmazó rendszereket építünk fel. A bottom-up módszer előnye, hogy a vizsgált rendszerben lejátszódó folyamatokat könnyebb megérteni elemi szinten, és az így szerzett tapasztalatokra, eredményekre alapozva többkomponensű, bonyolult gyakorlati rendszerek, pl. gépjárművekben használt vagy ipari katalizátorok tervezése is gördülékenyebbé, egyszerűbbé válhat.

A kutatók, annak érdekében, hogy a fenti elvárásoknak eleget tegyenek, egyre korszerűbb, egyre különlegesebb anyagok vizsgálatára is kiemelt erőfeszítéseket fordítanak. Erre azért is szükség van, mert sokszor igen összetett és speciális rendszerek alkalmazása indokolt, melyek egyedi fizikai-kémiai tulajdonságokkal bírnak, illetve többféle igénynek igyekeznek megfelelni egy időben. Egy ilyen speciális rendszer a kétdimenziós anyagok családja. A 2D anyagok a grafén (egy atomi rétegvastagságú grafit) felfedezését követően kerültek a kutatók érdeklődésének homlokterébe. A grafén bór-nitrid analógja, a hexagonális-bór-nitrid (h-BN) alternáló bór és nitrogén atomokat tartalmaz, valamint több kedvező fizikai és kémiai tulajdonságon osztozik a grafénnel.

Doktori munkám során az MTA-SZTE Reakciókinetikai és Felületkémiai kutatócsoport munkájába kapcsolódtam be, ahol a h-BN adszorpciós tulajdonságával foglalkoztam; egyfelől az etanol és az acetaldehid fémkatalizált folyamatait vizsgáltuk, másfelől molekulaadszorpciós templátként való alkalmazását tanulmányoztuk ezen a felületen. Az előállított h-BN réteg hordozója, az általunk alkalmazott szubsztrát egy (111) Miller-indexű ródiium egykristály (Rh(111)) volt.

Kisméretű szerves molekulák, mint pl. etanol és acetaldehid, katalitikus reakcióit tanulmányoztuk tiszta és különféle módosított ródiium egykristály felületén. Ebben az esetben a h-BN monorétegnek azt a tulajdonságát használjuk ki, hogy a (111) Miller-indexű egykristályokon szintetizálva, szabályos szerkezet jön létre (élek-pórusok), az így

kialakuló struktúrára periodikus korrugáltság jellemző. Az így keletkező pórusok átmérője (~2 nm) egybeesik azzal a mérettartománnyal, amelyben az arany katalitikusan aktív. Célunk megismerni és részletesen leírni a lehetséges reakcióutakat a tiszta Rh(111) és módosított egykristályfelületeken, a fenti molekulákra vonatkozóan. Az általunk alkalmazott módosítások során egy atomi réteg vastagságú h-BN nanohálót hoztunk létre a Rh egykristály felületén, amelyen Au nanorészecskéket állítottunk elő.

Vizsgáltuk továbbá nagyobb méretű molekulák, pl. ciklohexén, benzol, azobenzol, adszorpciós tulajdonságait is. Ebben az esetben a h-BN monorétegnek azt a tulajdonságát használtuk ki, hogy a szabályos, rendezett nanoháló struktúra a Rh(111) egykristály felületén jellemzően inert, illetve inertnek vélt. Ez alapján az elektromos vezető hordozó (Rh egykristály) és a vizsgálni kívánt molekula közötti kölcsönhatás feltehetően minimálisra csökken – tulajdonképp egyfajta izoláló szerepet tölt be a nanoháló, melynek köszönhetően a fém egykristályon történő vizsgálatokhoz képest jóval inertebb környezetben vizsgálhatjuk a molekulák adszorpciós tulajdonságait vagy további alkalmazások felé végezhetünk méréseket pl. molekulakapcsolási reakciók vagy heterogén nanostruktúrák (heterostruktúrák) kialakítása. Célkitűzéseink között szerepelt h-BN/szén alapú heterostruktúra létrehozása Rh(111) felületen: mind az ép h-BN felületén, annak bontása nélkül, szeretnénk volna kialakítani a szén (pl. grafén) réteget (grafén/h-BN/Rh(111)), mind 2D laterális struktúrában, ahol a szén beépül a h-BN nanoháló szerkezetébe (grafén-h-BN/Rh(111)).

## II. Kísérleti módszerek

A doktori munkám során alkalmazott legfontosabb kísérleti módszerek a nagyfelbontású elektron energia-veszteségi spektroszkópia (HREELS), a hőmérséklet programozott deszorpció (TPD) és az Auger-elektron-spektroszkópia (AES) voltak. Emellett eredményeim értékelése során támaszkodtam munkatársaim kísérleti (STM, XPS) és elméleti (DFT) munkáira, akik szintén ezen, vagy ehhez hasonló rendszereken végeztek méréseket. Az általunk legtöbbször használt módszer a nagyfelbontású elektron energiaveszteségi spektroszkópia (HREELS) hosszútávú rendezettséggel bíró felületeken végbemenő folyamatok tanulmányozására szánt, felületérzékeny elektronspektroszkópiai módszer. Alkalmazása során a szilárd minta, illetve annak felületére fókuszált kisenergiájú (~1-10 eV), monokromatikus elektronnyaláb kölcsönhatását vizsgáljuk, ahol a primer elektronnyalábot egy kisenergiájú elektronágyú biztosítja. A filamentből (izzószál, melynek anyaga lantan-hexaborid,  $\text{LaB}_6$ ) kilépő elektronok egy monokromátoron keresztül jutnak el a mintához, ahol a vibrációs gerjesztés megtörténik; ezt követően a felületről visszaverődő, energiaveszteséget szenvedett elektronokat egy, a monokromátorhoz hasonló felépítésű elektron energia-analízátorral detektáljuk. A minta felületén adszorbeált részecskék gerjesztési nívói is részt vesznek a folyamatban, ezért alkalmas a módszer az adszorbeált részecskék tanulmányozására. A HREELS módszer információt nyújt az adszorbeált molekulák rezgési átmenetéről. Előnye, hogy minden rezgési mód (infravörös, valamint Raman-aktív és optikailag inaktív módok) megfigyelhető a spektrumban. A minta felületére érkező  $E_i$  kiindulási energiával rendelkező elektronok visszaszóródott (elsődleges) és emittált (másodlagos) elektronokat generálnak. Az elektronok primer energiájától és a mérés geometriájától is függ, hogy a lehetséges kölcsönhatások közül mikor melyik a domináns. Dipólusos szórás (*dipole scattering*) esetén a primer elektron hosszú távú Coulomb-erőn keresztül lép kölcsönhatásba a felületen elhelyezkedő dipólusokkal (pl. molekuláris rezgés). Az elektron megközelítve a felületet elektromos erőteret hoz létre, amely tükörtöltést indukál a minta felületén. Ez az oszcilláló erőter merőleges a felületre és csak azokat a rezgéseket képes gerjeszteni, amelyek esetében a dipólusmomentum-változás szintén merőleges a felületre (illetve létezik a felületre merőleges komponense). Fémfelületek esetén további két kiválasztási szabály kerül előtérbe. Az első szerint csak a felületre merőleges rezgések HREELS aktívak. A második kiválasztási szabály kimondja, hogy az intenzitásnak akkor van maximuma, amikor a visszaverődési szög megegyezik a beeső szöggel (spekuláris geometria). A szóródó elektron energiát veszít, ezután elhagyja a mintát spekuláris

irányban. Szpekuláris geometrián értjük azt, amikor mind a beeső, mind a szóródott elektronnyaláb  $60^\circ$ -os szöget zár be a felület normálisával. Ütközéses szóródás (*impact scattering*), jön létre a felületen lévő részecske és a becsapódó elektron közötti rövidtávú kölcsönhatás során. E folyamatok egzakt leírása kvantummechanikai módszerekkel lehetséges. Az ütközés során az elektronok széles térszög tartományban szóródnak, ilyenkor a detektálást a felület normálisával  $45\text{-}50^\circ$ -os szöget bezáró ún. off-spekuláris elrendezésben végezzük. Fontos megjegyezni, hogy az ütközéses szóródási mechanizmussal keltett elektronok, a fent említett  $60^\circ$ -os detektálási szögtől eltérő (jellemzően  $10\text{-}20$  fokkal) detektálási geometria alkalmazása mellett is mérhető, ellentétben a dipólusos szóródási mechanizmussal keltett elektronokkal, amelyek már kis eltérés (néhány fok) is csökkent intenzitású jelet adnak.

Szilárd felületek kémiai összetételének vizsgálatára széles körben használt módszer az Auger-elektron-spektroszkópia (AES). Ez egy elemösszetétel vizsgálatra is alkalmas analitikai célú, elektron emissziós spektroszkópai technika. Alapja az Auger-effektus, miszerint a primer elektronnyalábból származó  $3\text{-}5$  keV energiájú beeső elektronok a minta felületén található atomok belső elektronhéjairól elektronokat löknek ki. Az így keletkezett hiány helyét egy, az eredetinel magasabb energiaszintről származó elektron elfoglalhatja és a felszabaduló energia egy harmadik héjon lévő elektron, az ún. Auger-elektron kibocsátásával távozhat. Az Auger-elektronok a szilárdtest atomjainak ionizációja során keletkező, karakterisztikus kinetikus energiájú elektronok. A kilépő elektron energiáját vizsgálva információt kaphatunk arról, milyen környezetben (a felület összetétele, szerkezete) zajlott le az Auger-folyamat, azaz a kilépő elektron energiája hordozza a kívánt információt.

A méréseinkhez felhasznált berendezés (BALZERS, Prisma) fűtött katódos, szeparálását tekintve négypólusú (kvadrupól) analizátorral ellátott tömegspektrométer. A fűtött filamentból kilépő elektronok fragmentumokra hasítják és ionizálják a gáztérben található molekulákat. Ezeket a fragmentumokat az analizátor tömeg/töltés ( $m/z$ ) szerint szelektálja, így azok analízise elvégezhető. Az analizátor két-két egymással párhuzamosan elhelyezkedő hengerforma elektródot tartalmaz, az egymással szemben lévők egyike időben permanens, míg a másik változó elektromos teret hoz létre. A térerősség változtatásával szabályozható, hogy mely fragmentumok jussanak el a detektor érzékeny terébe, a detektor egy elektronsokszorozó. A tömegspektrometria felhasználható hőmérséklet-programozott deszorpció (TPD) technikával végrehajtott mérések támogatására, kiegészítésére. Esetünkben a mintát egy tantál (Ta) fűtőszál

segítségével meghatározott sebességgel fűtjük, miközben a hőmérsékletet termoelemmel mérjük és az MS készülék segítségével az adott  $m/z$  értéknél detektáljuk a tömegspektrométer jelének intenzitását. A mintát a tömegspektrométer felé fordítva a deszorbeálódó gázok mennyiségét mérjük a hőmérséklet függvényében. Így nyerhetünk mennyiségi és minőségi információt egyaránt TPD technika használatával.

A vizsgálatainkat ultratiszta körülmények között végeztük, rozsdamentes és saválló acélból készült, kétszintes ultravákuum kamrában. A vákuumkamrát technikailag két részre oszthatjuk. Az első rész, egy kisebb térfogatú gázbevezető rendszer, melyhez csatlakoznak azok a gázpalackok, tartályok, amelyek tartalmazzák a minta felületére adszorbeáltatni kívánt anyagokat. E térrész nyomását egy rotációs és egy turbómolekuláris szivattyú segítségével szabályozzuk, az itt uralkodó nyomást Piráni vákuummérővel mértük. Hasonló módon történik a vákuum generálása a második térrész (fő kamra) esetén is; a fő kamra tartalmazza a fontosabb spektroszkópai berendezéseket. Itt a tipikus nyomás a munkavégzés megkezdése előtt jellemzően  $\sim 5 \times 10^{-10}$  mbar volt (izzókátodos ionizációs vákuummérő), amit turbómolekuláris és olajrotációs szivattyúk segítségével értünk el. Az elővákuum tér egy 0,1 mm átmérőjű kapillárison keresztül csatlakozott az UHV kamrához, az expozíció ideje alatt a mintát a kapilláristól  $\sim 3$  cm távolságra helyeztük el. A minta egy tantál mintatartóhoz volt rögzítve, amely közvetlen összeköttetésben állt egy rézből készült tartállyal, amelyen keresztül folyékony nitrogént adagolva biztosítottuk a minta hűtését egészen 160 K hőmérsékletig. A fűtést a mintához rögzített és a minta mögött fűtőszálként meghajlított Ta fűtőszállal valósítottuk meg. Ezzel a módszerrel maximálisan  $\sim 1100$  K hőmérsékletet tudtunk elérni, amelyet a mintához ponthegeztett termoelemmel mértünk. A mintatartó a tér három irányában ( $x, y, z$ ) elmozdítható, a függőleges tengelye mentén közel  $360^\circ$ -ban forgatható ( $\varphi$ ) manipulátorhoz kapcsolódott. Ez tette lehetővé a minta pontos és precíz pozicionálását a fő kamrában a megfelelő ( $x, y, z, \varphi$ ) koordináták meghatározása után. A Rh(111) egykristály felület tisztaságát argon-ionbombázás, oxidáció, illetve magas hőmérsékleten végzett termikus kezelések váltakoztatásával értük el. A tanulmányozni kívánt fémek párologtatását egy erre a célra tervezett, négyállású PVD forrással (Oxford Applied Research terméke) hajtottuk végre. A nagytisztaságú fémeket (99,95%) egy szénből készített mintatartó tégelyben helyeztük (alacsonyabb olvadáspontú fémek esetében), vagy fémrúd formájában fogattuk be a megfelelő pozícióba a párologtató készülékben.

### III. Új tudományos eredmények tézisszerű összefoglalása

1. Acetaldehid adszorpcióját vizsgáltuk tiszta és szénrel módosított Rh(111) egykristály felületén széles hőmérsékleti tartományban (170-1000 K). A Rh(111) egykristály minta felületén lejátszódó folyamatokat HREELS és TPD módszerekkel követtük.

**T1.1** HREELS mérésekkel igazoltuk, hogy acetaldehid adszorpciója tiszta Rh(111) egykristály felületen, mélyhőmérsékleten (170 K), oligomerek (dimer és trimer formák) képződéséhez vezet. Azonosítottuk a felületen kialakuló  $\eta^1$ -(O)-CH<sub>3</sub>CHO<sub>a</sub> és  $\eta^2$ -(O,C)-CH<sub>3</sub>CHO<sub>a</sub>. Bizonyítottuk, hogy az  $\eta^1$ -(O)-CH<sub>3</sub>CHO<sub>a</sub> forma az, amely dimer, trimer, illetve 2D polimer formába rendeződik. TPD mérésekkel igazoltuk, hogy a felület fűtésének hatására a maradék acetaldehid részben deszorbeálódik, részben disszociál CO, H<sub>2</sub> és CH<sub>4</sub> termékekre.

**T1.2** HREELS és TPD módszerrel igazoltuk, hogy a tiszta Rh(111) felületét szén réteggel módosítva, már kis C borítottság mellett ( $\theta_C \approx 0,05$ ) is visszaszorul az acetaldehid polimerizációja, a megfelelő adszorpciós centrumok, aktív helyek jelenlétének hiánya miatt. Továbbá, a szénrel módosított Rh(111) felületen már 230 K hőmérsékleten (tiszta felületen ez 300 K) regisztráltuk az acetaldehid szén-oxigén kötésének hasadását, hármasszimmetriájú helyeken kötött szén-monoxid képződése mellett.

**T1.3** TPD mérésekkel bizonyítottuk a kis mennyiségű felületi szénnek az acetaldehid deszorpciós termékeire (H<sub>2</sub>, illetve CH<sub>4</sub>) gyakorolt stabilizáló hatását. A deszorpciós termékek magasabb hőmérsékleten (430, illetve 300 K) hagyják el a minta felületét a tiszta Rh(111) mintánál (400, illetve 270 K) tapasztaltakhoz képest. Azonban, a CO deszorpciós csúcsmaximuma nem követi a hidrogén és a metán esetében tapasztalt trendet, hanem csökken a deszorpciós hőmérséklete, ugyanis a felületi C miatt a CO molekulák a kevésbé stabil kötőhelyeken tudnak csak megkötődni.

2. Fizikai gőzleválasztás módszerével párologtattunk aranyat tiszta és h-BN monoréteggel fedett Rh(111) egykristály minta felületére. A kialakított minták felületén vizsgáltuk az acetaldehid adszorpciós tulajdonságait, illetve katalitikus folyamatait. Az alkalmazott módosítások célja, hogy h-BN monoréteg segítségével izoláltan tudjuk tanulmányozni, hogyan befolyásolják nanoméretű aranyklasterek az acetaldehid katalitikus reakcióútjait.

**T2.1** HREELS és TPD eredményekkel igazoltuk, hogy a megfelelő aktív centrumok hiányában az acetaldehid polimerizációs folyamata visszaszorul. Ennek oka, hogy a folyamat lejátszódásához erős kölcsönhatás szükséges az acetaldehid molekula és a

szubsztrát Rh egykristály között, amihez tiszta Rh teraszok jelenléte szükséges (az arannyal való borítottság miatt, e helyek száma csökken). Oligomerek jelenlétét korábban is ilyen tiszta Rh teraszokban gazdag minta felületén detektáltuk.

**T2.2** HREELS mérési eredményeinkkel igazoltuk, hogy a rendezett  $2 \times 1$  Au-Rh felületi ötvözetben jelentősen csökken az acetaldehid disszociációjából származó CO mennyisége a tiszta ródiumon tapasztaltakhoz képest. Ennek oka a megfelelő aktív centrumok hiánya, így nincs alkalmas pozíció az acetaldehid bomlásának lejátszódására.

**T2.3** TPD eredményekkel kimutattuk, hogy a h-BN/Rh(111) rendszerre párologtatott arany segítségével növelhető az acetaldehid stabilitása a bór-nitrid felületen. A megkötött acetaldehid mennyisége egészen  $\sim 2$  MR arany borítottságig növelhető, jellemzően, amíg az él és sarok (alacsonyan koordinált) Au atomok száma is nő a kialakult Au nanoklasztereken.

**3.** Tanulmányoztuk az etanol reaktivitását tiszta és arannyal dekorált h-BN monoréteg felületén, amelyet Rh(111) egykristály felületén hoztunk létre.

**T3.1** HREELS és TPD eredményekkel igazoltuk, hogy az Au/h-BN/Rh(111) rendszer alkalmazható az etanol dehidrogénezési reakciójában. Méréseink szerint egy kitüntetett Au borítottság ( $\sim 1,5$  MR) esetén a legaktívabb a modell-katalizátorunk. Azt a borítottság tartományt találtuk kedvezőnek az etanol átalakítása szempontjából, amikor a legtöbb él és sarok (alacsonyan koordinált) Au atom helyezkedik el a felületen, amikor a legnagyobb az Au/h-BN határfelület (*interface*). Méréseinkkel igazoltuk, hogy a h-BN nanoháló nem csak kiváló hordozóként szolgál az Au nanoklaszterek számára, hanem HREELS eredményeink szerint aktív partner a dehidrogénezési folyamatban, melyet a  $\nu(\text{B-H})=2660 \text{ cm}^{-1}$  csúcs megjelenése támaszt alá.

**T3.2** HREELS technika segítségével kimutattuk, hogy a h-BN monoréteggel fedett Rh(111) egykristály felületen nem játszódik le a C-C kötés hasítása, mert nincs erre alkalmas aktív centrum az Au/h-BN/Rh(111) rendszeren. Szelektíven állítottunk elő hidrogént, CO képződése nélkül. TPD és HREELS mérésekkel igazoltuk, hogy acetaldehid és molekuláris hidrogén a fő deszorpciós termékek. Meghatároztunk egy kitüntetett arany borítottság tartományt ( $1,5$  MR közelében), amikor a termékek mennyisége maximumot ér el.

**4.** Az azobenzol, a benzol és a ciklohexén adszorpciós tulajdonságait tanulmányoztuk h-BN/Rh(111) rendszeren, amelynek célja volt megismerni a Rh(111) egykristályon



létrehozott h-BN nanoháló molekulaadszorpciós folyamatokban mutatott viselkedését és molekulaadszorpciós templátként való alkalmazhatóságának lehetőségeit

**T4.1** TPD mérésekkel igazoltuk, hogy jellemzően kétféle adszorpciós helyen kötődik meg az azobenzol a h-BN/Rh(111) rendszeren: a pórusokban és az éleken (*wires*). Szögfüggő HREELS mérésekkel igazoltuk, hogy az azobenzol döntő többségében transz izomerként és a felülettel párhuzamosan adszorbeálódik a minta felületén, majd a hőmérséklet növelésével disszociáció nélkül, intakt deszorbeálódik.

**T4.2** Szén-bór-nitrid heteroszerkezetet alakítottunk ki benzol és ciklohexén magas hőmérsékletű (1000 K) adszorpciójával a h-BN/Rh(111) mintán. Benzol magas hőmérsékletű adszorpciójával sikerült grafén, illetve grafén-szerű C réteget létrehoznunk a h-BN/Rh(111) minta felületén. A ciklohexén magas hőmérsékletű adszorpciójával azonban egy olyan monoréteges szén-h-BN laterális heterostruktúrát sikerült létrehoznunk, amiben a szén réteg a h-BN monoréteg elbomlásakor keletkező szabad ródium „*szigetekre*” épült be. Másszóval, a nagyobb hidrogén tartalmú molekula a h-BN réteg folytonosságát megbontotta és disszociációját követően beépült a szén a hordozó felületén lévő molekulaadszorpciós templátba, grafén szerű struktúrát kialakítva.

#### IV. Summary

I carried out my doctoral work and research on the surface of rhodium, more precisely on a (111) crystallographically oriented single crystal surface. The test substances I used were ethanol, acetaldehyde, benzene, cyclohexene and azobenzene. In our experiments, we performed measurements on the surface of pure Rh (111) and on the differently modified sample as well. As a typical surface modification hexagonal boron nitride (h-BN) monolayer is formed on the surface of the Rh single crystal by high temperature exposure of a borazine precursor molecule. Furthermore, we evaporated gold nanoparticles using the PVD technic not only on the pure Rh(111) single crystal surface but we also decorated the surface of the h-BN nanomesh with gold too.

The h-BN monolayer is a self-assembling, highly corrugated two-dimensional layer. Due to its complex properties, it provides an attractive research topic for studying catalytic reactions on its surface moreover it can act as a template for molecular adsorption. The special feature of the nanomesh is that due to the corrugation of h-BN, there are regions located closer to the support metal (in our case Rh(111)) (pore, pores), while other regions have bigger distance (edges, wire) from the substrate. The size of the pores is in good accordance with the size of metal nanoparticles (in our case gold nanoparticles) with increased catalytic activity. For this reason, additional modifications were made to the h-BN / Rh(111) system in some of the experiments by physical vapor deposition (PVD) of gold. As a result Au / h-BN / Rh(111) composite sample surface was formed to learn more about the adsorption and catalytic reactions of ethanol and acetaldehyde on this system.

Another important behaviour of the h-BN nanomesh is, which we tried to exploit in molecular adsorption processes, that it is electrically insulating and chemically resistant (quasi inert). Therefore, it drastically reduces the interaction between the molecules adsorbed on the surface and the support Rh, allowing us to study the adsorption properties of molecular switches (e.g. azobenzene) by eliminating the affecting effects of the support. Our aim was on one hand to map the energy loss spectrum of the azobenzene molecule by exposing the h-BN surface with multilayer coverage of azobenzene, minimizing the shielding effect of the h-BN nanomesh phonon vibrations on the azobenzene spectrum on the metal substrate. Nevertheless, investigation of the adsorption geometries of azobenzene was an important target too.

As a long-term goal, we intended to study the creation of various heterostructures, on the h-BN / Rh(111) system. We studied the adsorption properties of azobenzene, benzene

and cyclohexene on the h-BN / Rh(111) system, in order to understand the behaviour of the h-BN nanomesh formed on the Rh(111) single crystal in molecular adsorption processes and its applicability as a molecular adsorption template.

Our measurements were performed in an ultra-vacuum (UHV) chamber using high-resolution electron energy loss spectroscopy (HREELS), Auger-electron spectroscopy (AES), and temperature-programmed desorption (TPD) techniques.

## V. Publikációs lista

Magyar Tudományos Művek Tára (MTMT) azonosító: 10062650.

### Írásos közlemények

*Az értekezés témájához kapcsolódó közlemények*

1. Adsorption, polymerization and decomposition of acetaldehyde on clean and carbon-covered Rh(111) surfaces

I Kovács, A P Farkas, Á Szitás, Z Kónya, J Kiss

*Surf Sci* 664 (2017) 129-136

**IF<sub>2017</sub>=1,83**

2. Effect of Gold on the Adsorption Properties of Acetaldehyde on Clean and h-BN Covered Rh(111) Surface

A P Farkas, Á Szitás, G Vári, R Gubó, L Óvári, A Berkó, J Kiss, Z Kónya

*Top Catal* 61 (2018) 1247-1256

**IF<sub>2018</sub>=2,32**

3. Selective transformation of ethanol to acetaldehyde catalyzed by Au/h-BN interface prepared on Rh(111) surface

A P Farkas, Á Szitás, D Jurdi, K Palotás, J Kiss, Z Kónya

*Appl Catal A-Gen* 592 (2020) 117440-117449

**IF<sub>2020</sub>=5,01**

4. Adsorption of Azobenzene on Hexagonal Boron Nitride Nanomesh Supported by Rh(111)

Á Szitás, R Gubó, T Pásztor, A P Farkas, T Ajtai, L Óvári, K Palotás, A Berkó, Z Kónya

*J. Phys. Chem. C* 124 (2020) 14182-14194

**IF<sub>2020</sub>=4,19**

**ΣIF=13,35**

### Konferencia előadások

1. Modification of h-BN nanomesh, template for adsorption and catalytic reactions

Á Szitás, A P Farkas, K Palotás, J Kiss, Z Kónya

18th International Conference on Thin Films & 18th Joint Vacuum Conference -  
Budapest, Hungary 22-26 November 2020

2. Azobenzol molekuláris kapcsoló adszorpciós tulajdonságainak vizsgálata h-BN nanoháló felületén

Szítás Á, Farkas A P, Óvári L, Palotás K, Berkó A, Gubó R, Pásztor T, Kónya Z  
Magyar Fizikus Vándorgyűlés - Sopron, Magyarország 2019. augusztus 21-24.

3. A. P. Farkas, Á. Szítás, G. Vári, L. Óvári, A. Berkó J. Kiss, Z. Kónya  
Effect of gold on the adsorption properties of acetaldehyde on clean and h-BN/Rh(111) surface

European Conference on Surface Science, ECOSS-33, 2017, Aug. 27 – Sept. 1, Szeged

4. K. Palotás, A. P. Farkas, Á. Szítás, D. Jurdi, R. Gubó, T. Pásztor, L. Óvári, J. Kiss, A. Berkó, Z. Kónya

Comparison of the adsorptions of ethanol and azobenzene molecules on single-layer hexagonal boron nitride on Rh(111)

DPG-Frühjahrstagung, Dresden, 15-20. März 2020

5. Felületi adalékok hatása az acetaldehyd reakcióútjaira Rh(111)-en, HREELS és TPD vizsgálatok

Szítás Á, Farkas A P, Kovács I, Kónya Z, Kiss J

Kémiai Előadói Napok - Szeged, Magyarország 2017. október 17.

#### Nemzetközi konferenciákon szereplő posztterek

1. Imre Kovács, Arnold Péter Farkas, Ádám Szítás, Zoltán Kónya, János Kiss, Frigyes Solymosi

Reaction pathways of adsorbed acetaldehyde on the clean and modified Rh(111) surface

European Conference on Surface Science, ECOSS-33, 2017, Aug. 27 - Sept. 1, Szeged

2. Ádám Szítás, Arnold Péter Farkas, Imre Kovács, Zoltán Kónya, János Kiss

Adsorption, polymerization and decomposition of acetaldehyde on clean and carbon-covered Rh(111) surfaces

European Conference on Surface Science, ECOSS-33, 2017, Aug. 27 - Sept. 1, Szeged

3. Ádám Szitás, Arnold P Farkas, János Kiss, Zoltán Kónya

Phonon spectra of the clean and metal-modified h-BN monolayer

MPS'18, 21-24 August 2018, Budapest

4. Ádám Szitás, Arnold P Farkas, Viktória Faur, János Kiss, Zoltán Kónya

Preparation and characterisation of graphene-like carbon layer on h-BN nanomesh

European Conference on Surface Science, ECOSS-34, 26<sup>th</sup>-31<sup>st</sup>, August 2018, Aarhus

Denmark

5. Ádám Szitás, Arnold P. Farkas, Viktória Faur, János Kiss, Zoltán Kónya

Preparation and Characterisation of Graphene-like Carbon Layer on h-BN Nanomesh

8<sup>th</sup> Szeged International Workshop on Advances in Nanoscience (SIWAN-8), 2018.

október 7-10. Szeged, Magyarország

6. Krisztián Palotás, Arnold P Farkas, Ádám Szitás, Dániel Jurdi, Richárd Gubó,

Tibor Pásztor, Tibor Ajtai, László Óvári, János Kiss, András Berkó, Zoltán Kónya

Comparison of the adsorptions of ethanol and azobenzene molecules on single-layer hexagonal boron nitride on Rh(111)

Virtual DPG-Frühjahrstagung (DPG Spring Meeting) of the Surface Science Division, 1-4 March 2021

7. Krisztián Palotás, Arnold Farkas, Ádám Szitás, Dániel Jurdi, Richárd Gubó,

Tibor Pásztor, Tibor Ajtai, László Óvári, János Kiss, András Berkó, and Zoltán Kónya

Analysis of ethanol and azobenzene molecular adsorptions on single-layer hexagonal boron nitride on Rh(111)

ICN+T online July 12-15, 2021

## Társszerzői lemondó nyilatkozatok

Alulírottak, mint Szitás Ádám jelölt *A h-BN nanoháló alkalmazása molekulaadszorpciós és fémkatalizált folyamatokban* című doktori értekezéshez kapcsolódó *Selective transformation of ethanol to acetaldehyde catalyzed by Au/h-BN interface prepared on Rh(111) surface*, A P Farkas, Á Szitás, D Jurdi, K Palotás, J Kiss, Z Kónya, *Appl Catal A-Gen* 592 (2020) 117440-117449 DOI: 10.1016/j.apcata.2020.117440 publikáció társszerzői ezúton nyilatkozunk arról, hogy az ehhez a publikációhoz és a jelölt 3.1 és 3.2 tézispontjaihoz kapcsolódó eredmények elérésében a jelölt szerepe meghatározó fontosságú volt, ezért ezeket az eredményeket eddig nem használtuk fel tudományos fokozat megszerzésekor, s ezt a jövőben sem tesszük.

.....

Jurdi Dániel

Alulírottak, mint Szitás Ádám jelölt *A h-BN nanoháló alkalmazása molekulaadszorpciós és fémkatalizált folyamatokban* című doktori értekezéshez kapcsolódó *Effect of gold on the adsorption properties of acetaldehyde on clean and h-BN covered Rh (111) surface* A P Farkas, Á Szitás, G Vári, R Gubó, L Óvári, A Berkó, J Kiss, Z Kónya *Top Catal* 61 (2018) 1247-1256 DOI: 10.1007/s11244-018-0979-1 publikáció társszerzői ezúton nyilatkozunk arról, hogy az ehhez a publikációhoz és a jelölt 2.2 tézispontjához kapcsolódó eredmények elérésében a jelölt szerepe meghatározó fontosságú volt, ezért ezeket az eredményeket eddig nem használtuk fel tudományos fokozat megszerzésekor, s ezt a jövőben sem tesszük.

.....

Vári Gábor

## **Témavezetői nyilatkozatok**

Kijelentem, hogy Szitás Ádám doktorjelölt értekezésében felhasznált eredmények teljes mértékben tükrözik a jelölt hozzájárulását a disszertáció alapjául szolgáló publikációkban.

Dr. Kónya Zoltán .....  
témavezető

Dr. Farkas Arnold .....  
témavezető

Szeged, 2021. október 12.