

Oponentský posudek disertační práce

Mgr. Lucie Szabová:

Chemical reactivity of metal-supported ceria thin films: a density functional study

Disertační práce Lucie Szabové se zabývá teoretickým studiem struktury a elektronových vlastností ultratenkých vrstev ceria na površích mědi, které determinují jejich fyzikální a chemické vlastnosti. Hlavním cílem práce je určení vlivu tloušťky vrstev na jejich katalytické vlastnosti. Vliv rozměrů na vlastnosti systémů je v oblasti teorie i experimentu velmi aktuální téma. Protože jde o perspektivní materiály vhodné pro mnohé technologické aplikace, například pro katalyzátory, je disertační práce aktuální i z tohoto pohledu.

Úvodní část práce je věnována přehledu a kritickému rozboru metod studia elektronové struktury pevných látek. Tato část je napsána s přehledem a ukazuje na dobrou orientaci autorky v dané problematice. Vedle přehledu teorie a vhodnosti metody DFT+U pro silně korelované systémy se autorka v další části práce věnuje i experimentálním metodám studia struktury a elektronových stavů metodou STM s jejímiž výsledky porovnává své výpočty. Diskutuje možné adsorpční polohy z hlediska energetického i případné relaxace struktury povrchových atomů. Jde o dosti složitý problém napojení vrstev dvou odlišných systémů oxidů ceria a Cu(111).

Hlavním výsledkem disertace je zjištění silné závislosti adsorpce molekuly a disociované molekuly vody na tloušťce vrstvy oxidu ceria a přítomnosti substrátu Cu. V práci jsou porovnány výsledky adsorpce vody a disociovaných molekul na vrstvě 3ML oxidu ceria bez substrátu s 1ML a 2ML ceriovými vrstvami na substrátu Cu(111). Ukazuje se, že adsorpce vody je nejstabilnější u 2ML, nejméně stabilní je pak v případě vrstvy 3ML bez substrátu. Autorka prokazatelně objasnila tuto závislost přenosem náboje mezi vrstvami a Cu substrátem. Rekonstruovaná 1ML a 2ML vrstvy mají také jinou strukturu. Analýza výsledků elektronových stavů ukázala, že monovrstva Ce na Cu(111) je nabitá, vykazuje napětí a obsahuje vakance kyslíku, které jsou uspořádány a kompenzují rozdílnost mřížek vrstvy Ce a substrátu Cu. Proto je chování 1ML podstatně odlišné od 3ML a 2ML vrstev, které mají podobnou strukturu.

Předložená práce je svým obsahem i zpracováním na vysoké úrovni. Práce je přehledná, napsána srozumitelně a bez formálních chyb. Autorka v ní prokázala široké znalosti v dané problematice i schopnost jejich kritického zhodnocení a to jak na poli teorie, tak experimentu. Dosáhla originálních výsledků, které také dokázala kriticky zhodnotit a uspokojivě vysvětlit. Zajímavé a původní výsledky byly publikovány v prestižních impaktovaných časopisech. Výsledky disertace jsou cenným přínosem v problematice heterogenní katalýzy.

Otázky pro obhajobu:

V práci jsou diskutovány katalytické vlastnosti samotné vrstvy ceria a jedno a dvouvrstvé vrstvy na substrátu. Jaký lze očekávat průběh adsorbční energie a katalytických vlastností u tlustších vrstev na substrátu mědi? Bude mít monotónní průběh?

Jak tyto závislosti ovlivní volba energie U v DFT+ U teorii? U je voleno tak, aby výpočty souhlasily s experimentem, ale přeci jen je to volný parametr teorie.

Závěrem konstatuji, že předložená práce splnila stanovené cíle, splňuje kritéria kladená na disertaci a potvrzuje předpoklady autorky k samostatné tvůrčí práci. Proto doporučuji práci k obhajobě a po úspěšné obhajobě doporučuji udělit Lucii Szabové akademický titul Ph.D.

V Praze 15. listopadu 2013



doc. RNDr. Zdeněk Chvoj, DrSc.