

НАСТАВНО–НАУЧНОМ ВЕЋУ ФИЗИЧКОГ ФАКУЛТЕТА УНИВЕРЗИТЕТА У БЕОГРАДУ

Пошто смо на III седници Изборног и Наставно-научног већа Физичког факултета Универзитета у Београду, одржаној 21.12.2016 године, одређени за чланове Комисије за припрему извештаја о докторском раду „ТЕОРИЈА ЕЛЕКТРОНСКОГ ТРАНСПОРТА КРОЗ КВАНТНЕ ТАЧКЕ И МОЛЕКУЛЕ“ из научне области ФИЗИКА КОНДЕНЗОВАНОГ СТАЊА МАТЕРИЈЕ, коју је кандидат Милош Дражић предао Физичком факултету у Београду дана 19. 12. 2016. године, подносимо следећи

РЕФЕРАТ

1. Основни подаци о кандидату

1.1. Биографски подаци

Кандидат Милош Дражић рођен је 06. 07. 1978. године у Земуну, где је завршио основну школу и гимназију. Дипломирао је на Физичком факултету Универзитета у Београду, смер експериментална физика, 2008. године. Дипломски рад на тему „Пфафијанска квантна Холова стања“ под менторством др Милице Миловановић одбранио је са оценом 10 и стекао звање: дипломирани физичар. Докторске студије на смеру Физика кондензоване материје и статистичка физика уписао је 2008. године. Кандидат је у периоду од 2009/2010. године на пројекту Министарства просвете, науке и технолошког развоја у области основних истраживања „Динамика атомских, молекулских и мезоскопских система“ (бр. 141029) под руководством др Таска Грозданова. Од јануара 2011. године ангажован је у Лабораторији за мезоскопску физику на Институту за физику у Београду на пројекту Министарства просвете, науке и технолошког развоја у области основних истраживања „Електронске, транспортне и оптичке особине нанофазних материјала“ (бр. 171033) под руководством др Радомира Жикића.

1.2. Научна активност

Главна област истраживања Милоша Дражића је област физике кондензованог стања, а посебно област квантног електронског транспорта кроз наноструктуре и молекуле/квантне тачке. У раду се ослања на методе аналитичког и нумеричког описа квантног транспорта кроз молекулу који је постављен између две проводне електроде, користећи формализам Гринових функција дефинисаних на Келдишовој (Леонид Вениамјнович Келдыш, Leonid Veniaminovich Keldysh) контури као и теорију функционала густине (DFT-density functional theory).

Кандидат је научне активности реализовао у оквиру пројекта основних истраживања 171033 „Електронске, транспортне и оптичке особине нанофазних материјала“, финансираних од стране Министарства просвете, науке и технолошког развоја.

Кандидат је аутор два рада који су објављени у врхунском међународном часопису (M21) и истакнутом међународном часопису (M22), оба са импакт фактором већим од 1.

2. Опис предатог рада

2.1. Основни подаци

Докторска дисертација „ТЕОРИЈА ЕЛЕКТРОНСКОГ ТРАНСПОРТА КРОЗ КВАНТНЕ ТАЧКЕ И МОЛЕКУЛЕ“ написана је на српском језику. Подељена је на шест глава и један прилог, а литература је наведена после Закључка (после шесте главе). Написана је на 187 страна, не рачунајући насловну страну, захвалнице, сажетак, садржај, биографију аутора и изјаве. Теза садржи 18 слика. Списак литературе садржи 178 референци.

Први део тезе представља увод у област квантног електронског транспорта кроз отворене системе са кратким историјатом и описом раније коришћених техника. Уведен је генерални опис разматраног система, појам проширеног молекула и динамичке компоненте његовог укупног потенцијала (динамичка корекција), микроскопски Бутикеров (Markus Büttiker) и феноменолошки Ванг-Ванг-Гуо (Baigeng Wang, Jian Wang, Hong Guo) формализам линеарног одговора проширеног молекула на временски зависне спољашње потенцијале примењене на електроде и дате су карактеристичне димензије, описани транспортни режими, као и Ландауер-Бутикеров формализам теорије расејања примењене на квантни транспорт кроз мезоскопске системе.

Како је у оквиру теорије развијене у тези за рачунање временски хомогених Гринових функција потребан DFT, у њеном другом делу уведен је концепт DFT-а и могућности његове примене у области квантног транспорта.

У трећем делу тезе уведен је формализам Гринових функција дефинисаних на Келдишевој контури. Дате су једначине кретања и апроксимације сопствене енергије чиме се долази до једночестичног описа, као и физичка интерпретација Гринових функција.

Четврти део тезе представља оригиналан допринос који садржи резултате објављене у истакнутом међународном часопису (**M. S. Dražić**, Viktor Z. Cerovski, and Radomir Žikić, *Non-equilibrium linear-response transport through quantum dot beyond time homogeneity at Hartree–Fock level*, *Physica Status Solidi B* **562** (2014) 1438–1450), и бави се формулацијом теорије мале динамичке струје кроз систем молекула постављеног између две електроде, коришћењем Гринових функција у спрези са DFT-ом, где је главна претпоставка линеарна зависност између струје и динамичке корекције потенцијала проширеног молекула. Динамичка корекција потенцијала се добија линеаризацијом *Хартри-Фокове апроксимације у ортогоналном базису*, која се самоусаглашено мора одредити, а која зависи од временски хомогених Гринових функција и спољашњих временски зависних потенцијала на којима се налазе електроде.

Пети део тезе такође представља оригинални допринос који садржи резултате објављене у врхунском међународном часопису (**M. S. Dražić**, Viktor Z. Cerovski, Radomir Žikić, *Theory of time-dependent nonequilibrium transport through a single molecule in a nonorthogonal basis set*, *International Journal of Quantum Chemistry* **117** (2017) 57-73). У овом делу тезе је формулисана теорија мале динамичке струје кроз систем молекула постављеног између две електроде, са том разликом да се линеарна зависност између струје и динамичке корекције потенцијала проширеног молекула одређује у временски зависној линеаризованој *Хартријевој апроксимацији* (RPA-random phase approximation) у *неортогоналном базису*. За динамичку корекцију потенцијала проширеног молекула је искоришћен Бутикеров приступ у коме се између динамичке корекције и спољашњих

временски зависних потенцијала електрода, преко тзв. карактеристичних потенцијала, успоставља линеарна веза.

У шестом делу је дат закључак и сумирани су најзначајнији резултати, иза чега долази списак литературе.

После шестог поглавља и литературе налази се прилог који садржи доказе три израза који су наведени у четвртом и петом поглављу, као и код писан у програму Mathematica за рачунање кондуктансе. У првом делу прилога је дат доказ за изразе за струју и за екранирајуће поље у молекулу, који су наведени у поглављу четири, а у другом делу прилога је дат доказ за израз из поглавља пет, за везу између линеарних динамичких корекција Гринове функције и карактеристичних потенцијала. Трећи део садржи опис аналитички изведених величина које су садржане у изразу, чијом се интеграцијом по енергији добија фреквентно зависна кондуктанса, а након тога је приложен Mathematica код за рачунање кондуктансе.

2.2. Предмет и циљ рада

Докторска дисертација припада области *физике чврстог стања*, а подобласти *квантног електронског транспорта*.

Минијатуризација конвенционалне полупроводничке електронике и способност манипулације појединачним молекулима као и наножицама и конструкција и контрола електронских уређаја базираних на таквим системима представља активно поље изучавања које је мултидисциплинарног карактера. Појава и развој експерименталних техника попут STM-а (STM-scanning tunneling microscope), нанолитографских поступака, break junctions, као и синтетизација проводних наножица дало је замаха интензивном теоријском изучавању области. Понашање и одговор молекула постављеног између металних електрода, тј. наножица, (најчешће златних, угљеничних или алуминијумских) на примењен константни и/или временски променљиви напон је значајно и са технолошког и са теоријског аспекта. Јачина струје, карактеристична за одређени тип молекула, би могла да представља својеврсни „отисак“, чиме би се ДНК секвенцирање могло свести на брз и јефтин поступак. Наноскопске димензије изучаваног система чине класичан опис његових проводних особина неадекватним, па теоријско изучавање квантних ефеката може предвидети нове физичке појаве. Методи многочестичног описа стандардно се ослањају на DFT као и на формализам неравнотежних Гринових функција.

Тема ове докторске дисертације је испитивање утицаја временски променљивог напона мале амплитуде на транспортне особине произвољног молекула/квантне тачке који је постављен између две добро проводне електроде.

Циљ ове тезе је био да се развије теорија временски зависног квантног транспорта која би почивала на познатој и ефикасној, нумерички имплементираној вези између формализма временски хомогених Гринових функција и теорије функционала густине. Временски хомогене гринове функције се одређују помоћу DFT-а и кодови који служе за рачунање једносмерне струје користе овако добијене временски хомогене Гринове функције. Поред тога, помоћу DFT-а се рачунају и стационарни потенцијал молекула и стационарне сопствене енергије добијене услед споја између молекула и електрода. Мала временски зависна пертурбација примењена на електроде довешће до динамичких корекција наведених временски хомогених (стационарних) величина. Циљ је био да се коришћењем Хартри-Фокове и Хартријеве апроксимације у теорији линеарног одговора,

одреде динамичке корекције у функцији временски хомогених величина и да се потом развије временски зависна теорија и добије израз за динамичку струју. На тај начин би се DFT и кодови изворно развијени за рачунање једносмерне струје могли искористити и за рачунање динамичке струје. Ови кодови користе базис добро локализованих неортогоналних орбитала. Нумеричке имплементације временски зависног транспорта, описаног било уз помоћ временски зависне теорије функционала густине или коришћењем Гринових функција у реалном временском домену (пропагација Каданоф-Бајмових једначина), ослањају се на ортогонализационе схеме. Зато је избегавање ортогонализације и рад директно у неортогоналном базису био још један од циљева тезе.

Теорија почива на физичким аргументима Бутикерове временски зависне транспортне теорије и појму проширеног молекула.

Важење теорије је ограничено на фреквенције временски зависних потенцијала који морају бити мање од плазмене фреквенције метала од ког је електрода начињена (за добре метале су плазмене фреквенције око 2-2.5PHz), па је процењена горња граница око 1200THz (250nm). Доња граница фреквенције је наметнута линеарношћу теорије и задата је неједнакошћу $ev/hv < 1$ (за амплитуду напона од око 0,1mV, доња граница је око 20GHz).

2.3. Публикације

Садржај докторске дисертације има за основу два научна рада од којих је један објављен у истакнутом међународном часопису а други у врхунском међународном часопису:

[1] **M. S. Dražić**, Viktor Z. Cerovski, and Radomir Žikić, *Non-equilibrium linear-response transport through quantum dot beyond time homogeneity at Hartree–Fock level*, Physica Status Solidi B **562** (2014) 1438–1450. (**M22**, **ИФ = 1.605** (2013))

[2] **M. S. Dražić**, Viktor Z. Cerovski, Radomir Zikic, *Theory of time-dependent nonequilibrium transport through a single molecule in a nonorthogonal basis set*, International Journal of Quantum Chemistry **117** (2017) 57-73. (**M21**, **ИФ = 2.184** (2015))

2.4. Преглед научних резултата изложених у тези

Истраживање у оквиру докторске дисертације Милоша Дражића се може поделити на два дела, наиме:

[1] Теорија временски зависне струје мале аплитуде добијене у линеарној Хартри-Фоковој апроксимацији у формализму Гринових функција у спрези са DFT-ом у ортогоналној репрезентацији.

[2] Теорија временски зависне струје мале амплитуде добијене у линеарној Хартријевој апроксимацији, где је временски зависни потенцијал проширеног молекула, преко Бутикерових карактеристичних потенцијала, у линеарној вези са спољашњим потенцијалима. Теорија је изведена у формализму Гринових функција у спрези са DFT-ом у неортогоналној репрезентацији.

2.4.1. Теорија временски зависне струје мале амплитуде добијене у линеарној Хартри-Фоковој апроксимацији у формализму Гринових функција у спреси са DFT-ом у ортогоналној репрезентацији.

Коришћењем формализма Гринових функција у спреси са теоријом функционала густине аналитички се долази до општег израза за струјно-напонску карактеристику система молекула постављеног између две електроде у *Хартри-Фоковој апроксимацији у ортогоналном базису*. Динамички потенцијал проширеног молекула експлицитно фигурише у добијеном изразу за струју а уводи се како би струја остала гејџ инваријантна. Овај потенцијал се самоусаглашено одређује и не се прави његов развој по спољашњим временски зависним потенцијалима електрода. Динамички потенцијал, кроз самоусаглашену шему, имплицитно зависи од спољашњих потенцијала који представљају експериментално контролисану величину.

До поменутих резултата се долази кроз линеаризацију једначина кретања Гринових функција дефинисаних на Келдишевој контури које су репрезентоване у *ортогоналном базису*. Пропагација електрона кроз разматрану структуру молекула постављеног између две електроде описана је Гриновим функцијама а стопе расејања су описане кроз сопствену енергију која долази од споја између електрода и молекула. За временски хомогене компоненте ових величина је узето да су одређене уз помоћ DFT-а. Динамички одговор је добијен из линеаризоване једначине кретања Гринове функције и зависи од малих, временски зависних корекција две величине: сопствене енергије услед спреге између молекула и електрода и сопствене енергије услед Кулонове интеракције између електрона унутар проширеног молекула. Стандардно се намеће еквипотенцијалност електрода, а места у електродама где овакво понашање бива нарушено одређује границу објекта чије се транспортне особине изучавају: проширеног молекула. Самоусаглашеним урачунавањем динамичког одговора, задатог кроз динамичку сопствену енергију услед интеракције у *Хартри-Фоковој апроксимацији*, уводи се струја померања, решава се проблем партиције струје (део укупне струје померања се придружује струји честица једне електроде а други део струји честица друге електроде) и не уноси се додатна грешка услед самоинтеркције (мимо оне до које долази услед практичне примене теорије функционала густине). Због урачунавања динамичке изменске интеракције теорија је добар кандидат за опис временски зависног транспорта у случају слабе спреге између молекула и електрода.

2.4.2 Теорија временски зависне струје мале амплитуде добијене у линеарној Хартријевој апроксимацији, где је временски зависни потенцијал проширеног молекула, преко Бутикерових карактеристичних потенцијала, у линеарној вези са спољашњим потенцијалима. Теорија је изведена у формализму Гринових функција у спреси са DFT-ом у неортогоналној репрезентацији.

Коришћењем формализма Гринових функција у спреси са теоријом функционала густине аналитички се долази до општег израза за струјно-напонску карактеристику система молекула постављеног између две електроде у *Хартријевој апроксимацији у неортогоналном базису*. Основни израз за струју садржи линеарни развој по спољашњим временски зависним потенцијалима који се доводе на електроде и зависи од временски хомогених Гринових функција, временски хомогених сопствених енергија и Бутикерових карактеристичних потенцијала. Карактеристични потенцијали задовољавају Линдхардову

једначину. Решавањем Линхардове једначине и коришћењем DFT-а, добиле би се све величине потребне за рачунање променљиве струје.

Израз за струју се добио тако што се полази од израза за декомпозицију јединице за случај добро локализованих неортогоналних орбитала у реалном простору. Прави се једночестични развој оператора поља по операторима креације/аниhilације њихових дуалних стања. На основу добијеног развоја оператора поља, конструисане су Гринове функције на Келдишевој контури из чијих су се једначина кретања, након линеаризације, добиле нове везе између динамичких корекција временски хомогених Гринових функција и динамичког одговора система. Хамилтонијан је репрезентован у неортогоналном базису а Гринове функције у његовом дуалном базису. Кључан проблем у транспорту је везан за партиционисање система на добро дефинисане подсистеме. Таласна функција у изолованом систему (молекула) је локализована, али са смањивањем ширине баријера, што би одговарало процесу приближавања електрода, таласна функција „цури“ у електроде што доводи до тога да молекула више не може да се сматра изолованим објектом. Распростирање таласне функције молекула и у област електрода, доводи до преклапања између таласне функције молекула и стања у електродама, што омогућава тунелирање. Преклапање таласних функција води ка ненултим вредностима за антикомутационе релације између оператора креације/аниhilације стања у електроди и аниhilације/креације стања у молекулу. У ортогоналном опису антикомутатори између орбитала које припадају различитим подсистемима износе нула.

Дефиниција оператора броја честица је због неортогоналности неједнозначна, па је у раду узета Миликенова популациона анализа чиме се добија хермитски оператор броја честица. Добијени израз за временски променљиву струју садржи додатне чланове у односу на израз који би се добио коришћењем ортогоналног базиса. Ови чланови долазе од матрица преклапања између електрода и проширеног молекула као и од пројекције карактеристичних потенцијала на област њиховог споја. Без додатних чланова струја не би била гејд инваријантна. Израз за кондуктансу, која се из развијене теорије добија у Томас-Ферми апроксимацији, нумерички је испитиван на систему два једнодимензионална ланца са два атома као молекулом у моделу јаке везе.

За фреквенције близу нули, понашање система је резистивно и разлике између одговора у ортогоналном и неортогоналном случају нема. Са порастом фреквенције реална вредност резонантног максимума је све мања, а понашање система је индуктивно. Са друге стране, даље од резонантних стања кондуктанса почиње да расте са фреквенцијом. Ово иде у прилог томе да систем проводи индуктивно за енергије у близини резонанци а да је капацитивно провођење за енергије даље од резонанци могуће због опадања вредности имагинарног дела кондуктансе. Показано је да неортогоналност уводи асиметрични одговор и у реалном и у имагинарном делу кондуктансе у односу на минимум између два резонантна максимума. Неортогоналност у односу на ортогоналне орбитале даје мању јачину спреге између молекула и електрода што доводи до дужег време живота резонантних стања. На овај начин се може разумети механизам капацитивног прелаза који се види кроз негативан знак имагинарног дела кондуктансе у неортогоналном опису. Индуктивни прелаз се за високе фреквенције у оба случаја догађа због *photon assisted tunneling*-а када је видљив скок у вредности реалног дела кондуктансе. Индуктивно понашање за даљи пораст фреквенције је последица инерције електрона (време живота резонанци, тзв. *dwell time* , је дуже од периода временски звисне побуде) и немогућности електрона да моментално одговори на брзу промену напона.

ЗАКЉУЧАК

На основу изложеног Комисија закључује да докторски рад „ТЕОРИЈА ЕЛЕКТРОНСКОГ ТРАНСПОРТА КРОЗ КВАНТНЕ ТАЧКЕ И МОЛЕКУЛЕ“ који је предао кандидат **Милош Дражић**, даје значајан допринос области **електронског квантног транспорта** и да су задовољени сви Законом о универзитету и Статутом Физичког факултета прописани услови за одобравање одбране тезе. Делови тезе кандидата су публиковани у два међународна часописа. Стога сматрамо да овај рад може да буде прихваћен као докторска дисертација и

ПРЕДЛАЖЕМО

Наставно-научном већу Физичког факултета Универзитета у Београду да одобри њену јавну одбрану.

У Београду, 10. априла 2017. године

Чланови комисије:

др Виктор Церовски
Виши научни сарадник, Институт за физику Београд

др Радомир Жикић
Научни саветник, Институт за физику Београд

Проф. др Милан Кнежевић
Редовни професор, Физички Факултет, Београд

Проф. др Татјана Вуковић
Ванредни професор, Физички Факултет, Београд

др Божидар Николић
Доцент, Физички Факултет, Београд