Письма в ЖЭТФ, том 105, вып. 3, с. 175 – 181

Исследование анизотропии диэлектрического отклика релаксорного сегнетоэлектрика $Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$

В. Г. Залесский[+1)], *А. Д. Полушина*[+*], *Е. Д. Обозова*[+], *А. В. Дмитриев*[+], *П. П. Сырников*[+], *С. Г. Лушников*[+]

[+] *Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, 194021 Санкт-Петербург, Россия*

[*] *Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет "ЛЭТИ" им. В.И. Ульянова (Ленина), 197376 Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 30 ноября 2016 г.

После переработки 16 декабря 2016 г.

Представлены результаты исследований диэлектрического отклика, проводимости и доменной структуры монокристаллов $(Na_{1/2}Bi_{1/2})TiO_3$ в диапазоне температур 290–750 К для кристаллографических направлении [100], [110] и [111]. Показано, что область оптической изотропизации наблюдается в поляризованном свете в температурном интервале 570–620 К. При этом двойное лучепреломление (Δn) уменьшается и исчезает (вместе с изображением доменной структурой) для направлений [100]. В направлении [111] область оптической изотропизации характеризуется исчезновением изображения доменной структуры и существованием отдельных областей с частичным погасанием. В направлении [110] доменная структура остается различимой на фоне значительного уменьшения Δn в указанном нами интервале температур. Область изотропизации также проявляется в температурном поведении мнимой части диэлектрического отклика и определяется изотропным характером проводимости в интервале 570–620 К. Объемная проводимость носит термоактивированный характер с энергиями активации $E_a = 50-60$ мэВ при $T < 500$ К и $E_a = 700-900$ мэВ для $T > 620$ К. Низкочастотная дисперсия диэлектрического отклика определяется механизмом Максвелла–Вагнера и связана с ростом ионной проводимости в области температур выше 620 К. Анизотропия восприимчивости сохраняется во всем изученном диапазоне частот (25 Гц–1 МГц) и температур.

DOI: 10.7868/S0370274X17030092

При исследовании фазовых переходов и динамики решетки в физике конденсированных сред кристаллы со структурой перовскита с общей формулой ABO_3 являются модельными объектами, что обусловлено как относительной простотой структуры, так и многообразием физических явлений, наблюдаемых в соединениях этого семейства. Действительно, сегнетоэлектрические и антисегнетоэлектрические, сегнетоэластические, релаксорные и многие другие состояния реализуются в кристаллах перовскитов при изменении таких термодинамических параметров как температура, давление, приложенное электрическое поле и т.д. Широкое практическое применение данных соединений стимулирует исследование физических свойств и синтез новых кристаллов. Одним из представителей обширного семейства перовскитов, насчитывающего около 1500 соединений, является $(Na_{1/2}Bi_{1/2})TiO_3$ (далее NBT). Семейство NBT относят к релаксорным сегнетоэлектрикам с разупорядочением в А-подрешетки перовскита [1]. Большой интерес исследователей к этому соединению обусловлен как гигантскими значениями пьезоэлектрических коэффициентов, что делает его наиболее вероятным кандидатом для предстоящей замены свинцовосодержащих пьезоэлектриков в промышленности [2, 3], так и нетривиальной динамикой кристаллической решетки, в которой реализуются сегнетоэластические, сегнетоэлектрические и релаксорные состояния [4–6].

Долгая история исследований NBT не внесла ясности в понимание механизмов фазовых переходов, более того, даже их последовательность продолжает оставаться предметом горячих дискуссий. Достоверно установлено, что при $T \sim 810$ К существует несобственный сегнетоэластический фазовый переход 1-го рода из кубической ($Pm\bar{3}m$) в тетрагональную фазу ($P4mb$). Исследования структуры NBT с помощью электронной микроскопии высокого разрешения позволили авторам [7] предположить существование промежуточной орторомбической фазы, разделяющей тетрагональную и ромбоэдрическую сегнетоэлектрическую фазы дополнительно к предполо-

1)e-mail: nsh@mail.ioffe.ru

жению о сосуществовании тетрагональной и ромбоэдрической фаз. В этой же области температур проявляются и антисегнетоэлектрические свойства модулированной фазы [8]. Открытым остается вопрос и о структуре сегнетоэлектрической фазы, обнаруженной в NBT при температуре ниже 500 K: обсуждаются как ромбоэдрическая, так и моноклинная симметрия и/или их сосуществование [9].

Исследования диэлектрического отклика NBT в диапазоне 300–900 K в широком частотном интервале позволили выделить четыре характерных участка на температурной шкале, разделенные между собой аномалиями [10–12]. Рассматривая их в режиме охлаждения можно выделить в окрестности 800 K первую, размытую аномалию, увеличивающуюся с понижением частоты и ясно видимую при частотах ниже 50 кГц [11]. Восприимчивость достигает значений 10^5, сильно зависит от частоты и уменьшается при понижении температуры. Один из возможных механизмов высокотемпературной частотной дисперсии, связанный с существованием параэлектрических кластеров обсуждался в работе [11]. Широкая аномалия диэлектрического отклика в окрестности 620 K не обладает частотной зависимостью, но в ряде работ указывают на антисегнетоэлектрические свойства ромбоэдрической фазы. Область температур ниже 550 K характеризуется слабой частотной зависимостью и появлением спонтанной поляризации. Нужно отметить, что, несмотря на различия в экспериментальных данных по температурам фазовых переходов, температурному поведению диэлектрического отклика, а также конфигурации доменных структур [11, 12], общий характер наблюдаемых зависимостей сохраняется. Причиной такого различия является нестехиометрия в химическом составе, которая влияет на параметры кристаллической решетки, фазовые переходы и диэлектрические свойства NBT [12]. В этой же работе показано, что вариация химического состава NBT зависит от технологии роста кристаллов (из расплава, методом Чохральского).

В исследованиях динамики фазовых переходов NBT особое место занимает т.н. область изотропизации. Эта область была обнаружена при изучении доменной структуры в поляризованном свете и является на настоящий момент одним из наименее изученных явлений в фазовых превращениях NBT. В кристаллооптических исследованиях NBT в направлении типа [100], были обнаружены сегнетоэластические домены, возникающие ниже 800 K. Понижение температуры приводит к тому, что двойное лучепреломление и изображение доменной структуры в поляризованном свете исчезает в окрестности 610 K и появляется снова при температурах ниже 570 K (см. [12–16] и ссылки в них). Конфигурация доменов сохраняется вне указанной области температур, движения доменных стенок не наблюдается. В тоже время, ориентация оптических индикатрис относительно доменных стенок меняется, что приводит к тому, что они становятся оптически неразличимы в области температур 570–610 K [14, 16]. Эта область температур получила название область изотропизации. Дополнительно нужно отметить, что область оптической изотропизации коррелирует с областью сосуществования ромбоэдрической и тетрагональной фаз. В работе [14] рассматриваются три возможные причины изотропизации оптических свойств NBT без обсуждения возможных механизмов их образования: (i) существование оптически изотропной фазы с “кубической” симметрией, (ii) существование аномально малых, оптически анизотропных доменов с различными направлениями их оптических индикатрис и (iii) возникновение аморфного состояния. Структурные исследования не подтверждают кубическую симметрию NBT в данной области температур, более того, данная область является полярной, как это следует из работы [5]. Указанные результаты исключают оптическую изотропию кристаллов, связанную с аморфным состоянием или кубической симметрией NBT в диапазоне 570–610 K.

Заметим, что подавляющее большинство известных нам диэлектрических или оптических измерений были проведены на монокристаллах с ориентацией типа [100] или на поликристаллических образцах. Это соображение стимулировало нас на проведение систематических исследований анизотропии диэлектрического отклика, проводимости и оптических свойств монокристаллов NBT в широком диапазоне температур, акцентируя основное внимание на область изотропизации.

Монокристаллы NBT стехиометрического состава были выращены методом Чохральского. Из були были вырезаны три ориентированные пластинки с направлениями [100], [110] и [111] относительно кубической фазы. Напыленные золотые электроды отжигались при температуре 1000 K в течении трех часов. Диэлектрические измерения в диапазоне частот 25 Гц–1 МГц проводились с помощью E7-20 импедансметра, а проводимость на постоянном токе σ_{dc} измеряли тераомметром E6-13A. Одновременно с диэлектрическими измерениями проводились кристаллооптические исследования и наблюдение температурной эволюции доменной структуры с помощью поляризационного микроскопа, оборудованного

CCD-камерой. Стабилизация температур в печи проводилась автоматически и точность при измерениях в исследуемом диапазоне температур (290–750 K) была не хуже 0.1 K.

На рис. 1 и 2 представлены температурные зависимости действительной ε' и мнимой ε'' частей

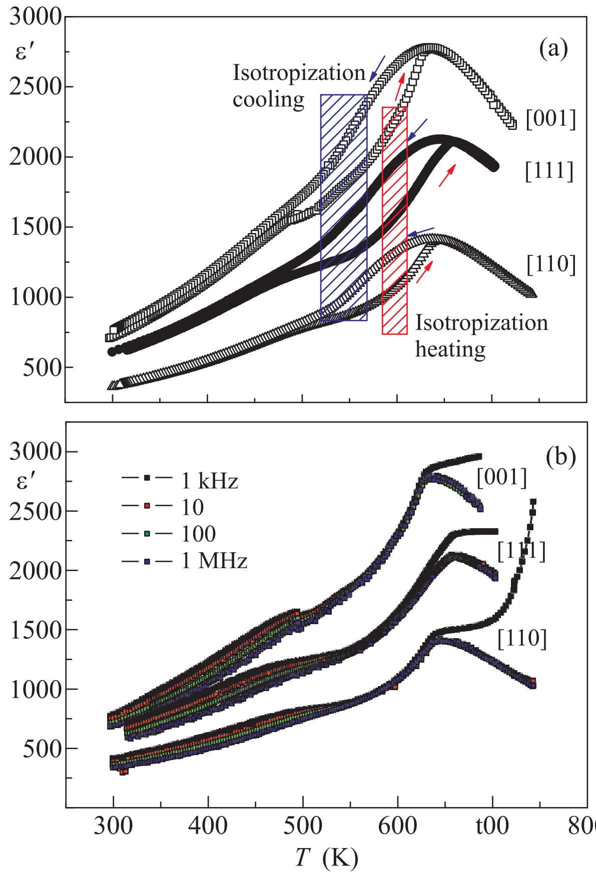

Рис. 1. (Цветной онлайн) Температурная зависимость действительной части диэлектрической проницаемости $\varepsilon'(T)$ $Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$ для трех кристаллографических направлений. (a) – Прямой (нагревание) и обратный (охлаждение) температурный ход на частоте 100 кГц. Прямоугольниками отмечены области оптической изотропизации. (b) – Прямой ход $\varepsilon'(T)$ для четырех частот

комплексной диэлектрической проницаемости $\varepsilon^* = \varepsilon' - i\varepsilon''$ в кристаллографических направлениях [001], [111] и [110]. На рис. 1a, b хорошо видна анизотропия действительной проницаемости, при которой величины ε' для указанных направлений соотносятся между собой приблизительно в соотношении 1 : 0.75 : 0.5 на всем интервале температур ниже 750 K. Температурный ход $\varepsilon'(T)$ на частоте 100 кГц для всех трех направлений примерно одинаковый и имеет значительный температурный гистерезис (нагревание и охлаждение), наблюдаемый в интервале

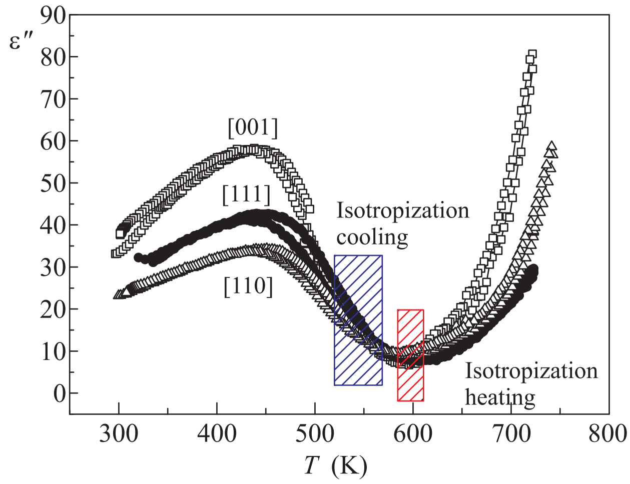

Рис. 2. (Цветной онлайн) Температурная зависимость мнимой части диэлектрической проницаемости $\varepsilon''(T)$ $Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$ для трех кристаллографических направлений, прямой и обратный температурные ходы на частоте 100 кГц. Прямоугольниками отмечены области оптической изотропизации при нагревании и охлаждении образца

470–620 K (см. рис. 1a). Характерный широкий максимум при температуре $T \sim 620$ K со значительной низкочастотной дисперсией в высокотемпературной области сменяется (при понижении температуры) областью с низкочастотной дисперсией, проявляющейся ниже $T \sim 520$ K (см. рис. 1b). Данные результаты хорошо согласуются с опубликованными ранее [10] данными диэлектрических измерений вдоль направлений [100].

На рис. 1b видно, что низкочастотная дисперсия $\varepsilon'(T)$ существует при температуре выше $T_m \sim 620$ K для всех измеренных направлений, а положение пика размытого максимума при 620 K не зависит от частоты, в отличие от фоновой диэлектрической проницаемости, которая монотонно возрастает с ростом температуры и с уменьшением частоты. Вторая область с частотной дисперсией наблюдается при температурах ниже $T \sim 520$ K и также не зависит от направлений (см. рис. 1b), ее возникновение коррелирует с появлением поляризации [5]. Анализ частотной дисперсии показывает, что в районе комнатной температуры относительное изменение диэлектрической проницаемости в интервале частот 1 кГц–1 МГц (т.е. величина относительной дисперсии $\Delta\varepsilon'_{(1\,\text{кГц}-1\,\text{МГц})}/\varepsilon'_{1\,\text{кГц}}$) примерно одинаково для всех трех направлений и составляет 20 %. Таким образом, анизотропия в действительной части диэлектрической проницаемости наблюдается в широком интервале температур.

Результаты исследований мнимой части диэлектрического отклика в NBT представлены на рис. 2, 3. Хорошо видно, что в высокотемпературной области

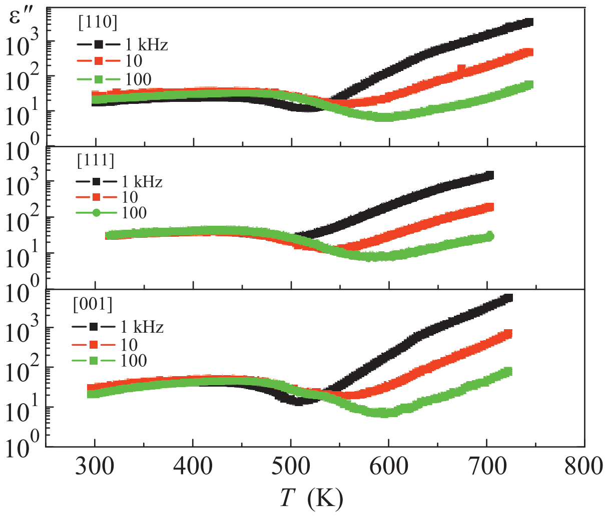

Рис. 3. (Цветной онлайн) Температурная зависимость мнимой части диэлектрической проницаемости $\varepsilon''(T)$ $Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$ для трех частот и трех кристаллографических направлений

($T > 650$ K) наблюдается значительный рост потерь, обусловленный сильной дисперсией ε'' по частоте (см. рис. 3). При температурах ниже 600 K наблюдается широкая аномалия с частотно-зависимым положением максимума ($T_m \sim 470$ K на частоте 1 кГц). Температурная область, в которой наблюдается аномалия $\varepsilon''(T)$ соответствует области существования низкочастотной дисперсии в $\varepsilon'(T)$. Нужно отметить, что дисперсия $\varepsilon''(T)$ в рассматриваемом диапазоне частот пренебрежимо мала при температурах ниже 500 K.

На рис. 2, 3 также представлены температурные зависимости мнимой части диэлектрической проницаемости $\varepsilon''(T)$ для различных кристаллографических направлений. На рис. 2 хорошо видно, что при комнатной температуре величины ε'' для указанных выше кристаллографических направлений различаются, но при повышении температуры эта разница уменьшается и в окрестности 530 K анизотропия исчезает. Дальнейшее повышение температуры приводит к тому, что анизотропия ε'' восстанавливается выше 580 K. При температуре вне интервала 520–600 K величины ε'' в трех направлениях соотносятся между собой примерно в том же соотношении, что и значения действительной части диэлектрического отклика.

Таким образом показано, что мнимая диэлектрическая проницаемость $\varepsilon''(T)$ в интервале температур 520–600 K становится *изотропной*. Отметим, что изотропизация ε'' наблюдается в области температурного гистерезиса действительной величины $\varepsilon'(T)$ (см. рис. 1a). При этом температурный гистерезис самой величины $\varepsilon''(T)$ выражен незначительно.

Изотропизация диэлектрических потерь в интервале 520–620 K может быть обусловлена вкладом проводимости. Мнимая часть диэлектрической проницаемости, характеризующая потери в диэлектрике связана с проводимостью $\sigma(\omega, T)$ соотношением $\varepsilon''(\omega, T) = \sigma(\omega, T)/(\omega\varepsilon_0)$. Механизм Максвелла–Вагнера, который можно рассматривать в качестве вероятной причины дисперсии диэлектрического отклика в NBT нужно анализировать, используя как температурные, так и частотные зависимости проводимости [17]. При этом $\sigma(\omega, T)$ определяется как

$$\sigma(\omega, T) = \sigma_{\mathrm{dc}}(T) + \sigma_{\mathrm{ac}}(\omega, T), \qquad (1)$$

где σ_{dc} – сквозная (омическая) проводимость на частоте $\omega = 0$, определяемая дрейфом свободных зарядов в постоянном поле и σ_{ac} – проводимость, связанная с потерями при движении локализованного заряда во внешнем поле. Температурная зависимость проводимости $\sigma_{\mathrm{dc}}(T)$ для разных направлений представлена на рис. 4, из которого следует,

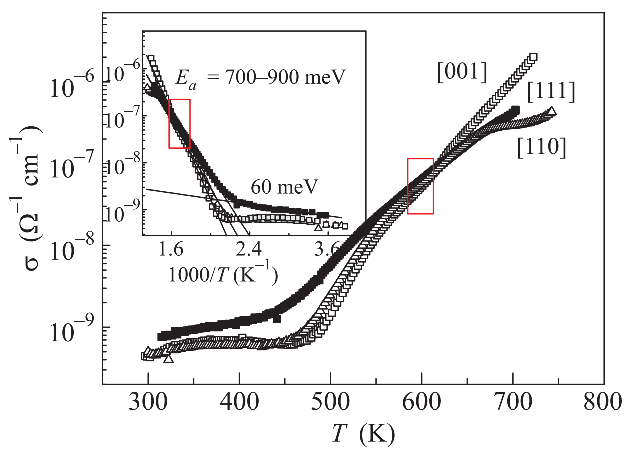

Рис. 4. (Цветной онлайн) Температурная зависимость $\sigma_{\mathrm{dc}}(T)$ проводимости $Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$ для трех кристаллографических направлений. Прямоугольниками отмечены области оптической изотропизации при нагревании образца

что $\sigma_{\mathrm{dc}}(T)$ составляет $6 \cdot 10^{-10}$ Ом$^{-1} \cdot$ м$^{-1}$ (для направлений [100], [110]) и слабо меняется в диапазоне температур 300–470 K, но увеличивается более чем на три порядка до значений $\approx 10^{-6}$ Ом$^{-1} \cdot$ м$^{-1}$

при 750 K. На врезке к рис. 4 видно, что эти зависимости следуют термоактивационному закону $\sigma_{\rm dc} = \sigma_0 \exp(-E_a/kT)$, где E_a – энергия активации носителей заряда, k – постоянная Больцмана. Энергия термоактивации в районе 470 K меняется скачком от 50–60 мэВ до 700–900 мэВ. Температурное поведение проводимости $\sigma_{\rm dc}(T)$ в NBT характеризуется совпадением для направлений [001] и [110] в диапазоне температур от комнатной до 470 K; изотропизацией в области температур 560–620 K; анизотропией для всех исследуемых направлений выше 620 K (см. рис. 4). Важно отметить, что температурные зависимости проводимости $\sigma_{\rm dc}(T)$ для всех трех кристаллографических направлений совпадают в области температур 520–620 K, где наблюдалась изотропизация диэлектрических потерь.

Более сложная ситуация наблюдается для $\sigma_{\rm ac}(\omega, T)$ проводимости. На рис. 5 представлены

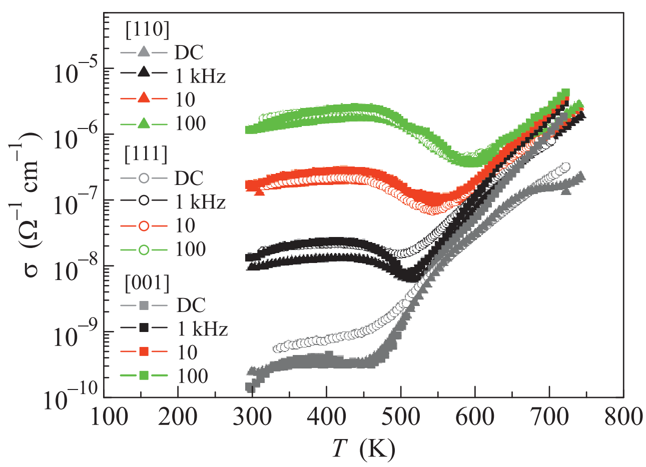

Рис. 5. (Цветной онлайн) Температурная зависимость $\sigma_{\rm dc}(T)$ и $\sigma_{\rm ac}(\omega, T)$ проводимостей в $Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$ для трех кристаллографических направлений

температурные зависимости $\sigma_{\rm ac}(\omega, T)$ проводимости для различных кристаллографических направлений и частот. Хорошо видно, что в высокотемпературной области для всех частот присутствует термоактивационная зависимость $\sigma_{\rm ac}(\omega, T)$, которая переходит при понижении температуры в размытый максимум, положение которого зависит от частоты. При этом на высоких частотах положение максимума смещается в сторону высоких температур. Анизотропия $\sigma_{\rm ac}(\omega, T)$ хорошо видна для низких частот и практически исчезает при повышении частоты: $\sigma_{\rm ac}(\omega, T)$ становится изотропной (в рамках погрешности). В высокотемпературной области дисперсия $\sigma_{\rm ac}(\omega, T)$ практически исчезает, так же как и анизотропия. Можно предположить, что при температурах выше 620 K дисперсия диэлектрического отклика определяется релаксацией Максвелла–Вагнера, вызванная ростом проводимости, связанным с увеличением ионной подвижности в NBT. В таком случае изотропизация мнимой части диэлектрического отклика обусловлена изотропизацией проводимости в диапазоне температур от 570–620 K.

Рассмотрим оптические свойства и эволюцию доменной структуры NBT в широком температурном интервале для различных кристаллографических направлений. На рис. 6 представлены микрофотографии доменной структуры (наблюдаемой при нагревании) в проходящем через кристалл поляризованном свете в направлениях [001], [111] и [110] (детальный анализ эволюции доменной структуры будет опубликован отдельно). Для направлений [100] хорошо видно исчезновение двойного лучепреломления и изображения доменной структуры, что согласуется с опубликованными данными по оптической изотропизации NBT [12–16]. В направлении [111] (см. рис. 6) наблюдается частичная изотропизация: исчезновение изображения доменной структуры и уменьшение двойного лучепреломления. В поле микрофотографии видны нерегулярные области с частичным погасанием в поляризованном свете. Для направления [110] при частичном погасании можно различить изображение доменной структуры. Диапазон температур, в котором наблюдаются описанные выше явления зависит от температурного режима: при нагревании – 570–620 K и при охлаждении 540–610 K. Оптическая изотропизация характерна для всех исследованных направлений, но полная изотропизация наблюдается только в направлении [100] для рассматриваемого интервала температур. Возможными являются следующие предположения: (i) изображения доменов становятся оптически неразличимыми в силу исчезновения двойного лучепреломления, (ii) домены уменьшаются, их величины становятся аномально малыми и они не наблюдаются с помощью оптического поляризационного микроскопа. В пользу первого предположения говорит наблюдение изображения доменной структуры в направлении [110]. Непонятным остается, как эта доменная структура связана с наблюдаемой вне области изотропизации доменной структурой, какова симметрия кристалла и природа изотропизации $\sigma_{\rm dc}$ в этой области температур? В случае уменьшения размеров доменов до аномально малых, не различимых в наших оптических наблюдениях, предложенных в качестве объяснения в работе [14] не понятно существование изображения доменной структуры в [110]. Возможным объяснением появления аномально малых, оптически ани-

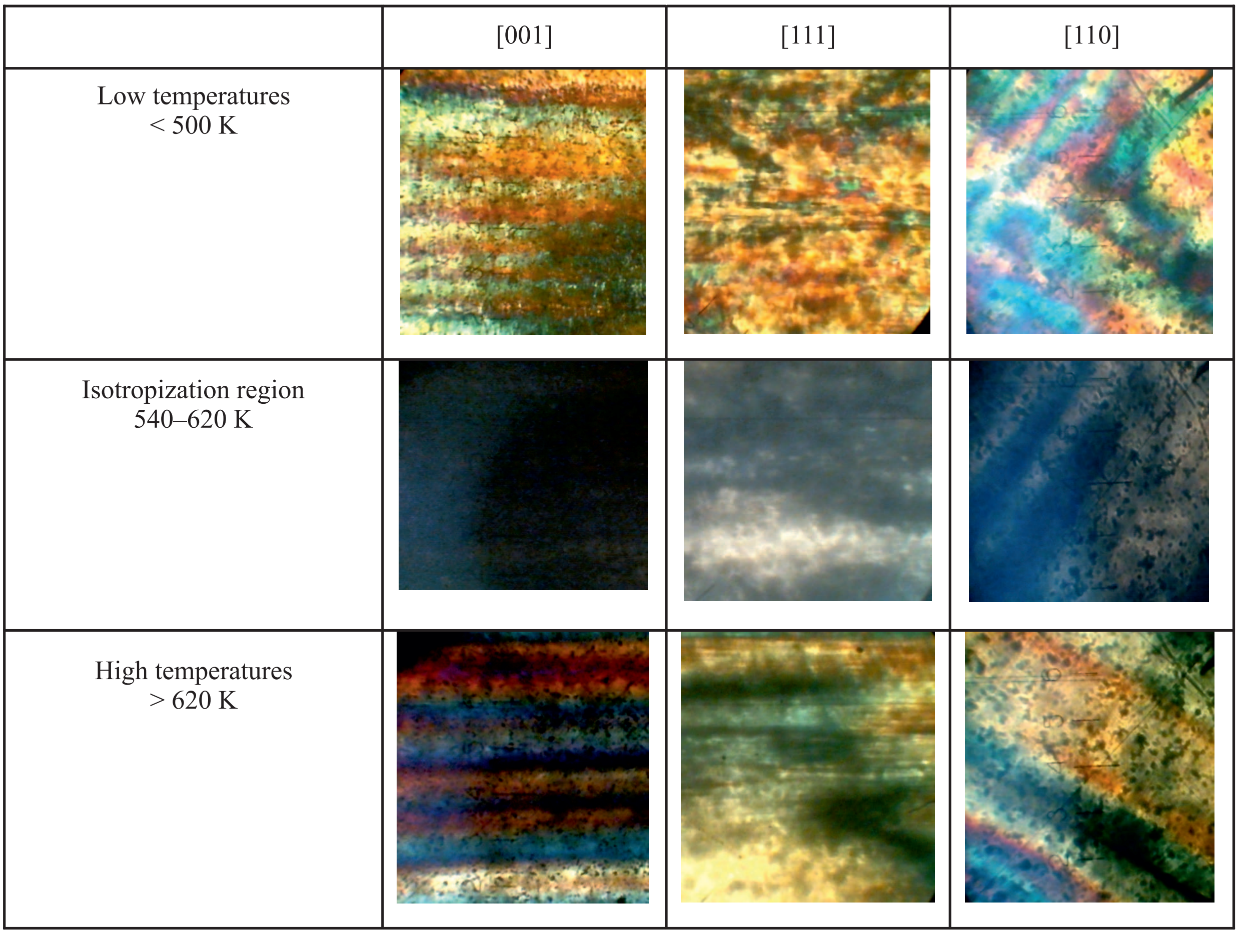

Рис. 6. (Цветной онлайн) Микрофотографии доменной структуры $Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$ для различных температур и в трех кристаллографических направлениях, полученные в поляризованном свете при нагревании образцов

зотропных доменов с различными направлениями их оптических индикатрис [14] в NBT может быть возникновение области сосуществования различных фаз (тетрагональной и ромбоэдрической) [7, 14], связанных с одной из них. Вторая фаза проявляет себя в настоящих измерениях в виде остатков доменной структуры в направлении [110]. Появление хаотично ориентированных анизотропных доменов в области сосуществования фаз может приводить к изотропизации оптических свойств: исчезновению (частичному или полному) двойного лучепреломления, доменной структуры. В пользу существования таких доменов говорит и фактическая изотропизация объемной проводимости в обсуждаемой области температур. Необходимы дополнительные исследования как структуры, так и эволюции доменной структуры в NBT в области температур оптической изотропизации.

Суммируя результаты измерений диэлектрической проницаемости NBT в широком частотном и температурном интервале в различных кристаллографических направлениях, можно отметить, что анизотропия действительной части диэлектрического отклика сохраняется во всем диапазоне температур. При этом мнимая часть диэлектрического отклика анизотропна только в области низких и высоких температур. Дисперсия диэлектрического отклика в высокотемпературной области обусловлена механизмом Максвелла–Вагнера и связана, по-видимому, с ростом ионной проводимости. Слабая аномалия в окрестности 470 K, в области низкочастотной дисперсии действительной части диэлектрического отклика ясно проявляется в мнимой части отклика в низкотемпературной сегнетоэлектрической фазе. Такая аномалия частотно зависима и положение ее максимума сдвигается в область высоких температур при увеличении частоты, что характерно для релаксорных сегнетоэлектриков [1, 18]. Дополнительно нужно подчеркнуть, что аномалия не связана со структурным фазовым переходом, как и для случая PMN [18], но коррелирует с появлением поляризации. Область изотропизации в диапазоне 570–620 K наблюдается в поведении мнимой части диэлектрического отклика, проводимости, двойного лучепреломления и температурной эволюции доменной структуры. Познание природы оптической изотропизации остается в настоящий момент открытым вопросом и его решение тесно связано как с определением структуры, так и с пониманием динамики кристаллической решетки NBT в области 570–620 K.

Работа выполнена при поддержке Российского Научного Фонда (грант # 14-12-00257).

---

1. Г. А. Смоленский, В. А. Исупов, А. И. Аграновская, Н. Н. Крайник, ФТТ **2**, 2982 (1960).
2. L. E. Cross, Ferroelectrics **151**, 305 (1994).
3. T. Takenaka, K. Maruyama, and K. Sakata, Jpn. J. Appl. Phys. **30**, 2236 (1991).
4. S. B. Vakhrushev, V. A. Isupov, O. E. Kvyatkovsky, N. M. Okuneva, I. P. Pronin, G. A. Smolensky, and P. P. Syrnikov, Ferroelectrics **63**, 153 (1985).
5. G. O. Jones and P. A. Thomas, Acta Cryst. B **58**, 168 (2002).
6. J. Petzelt, S. Kamba, J. Fabry, D. Noujni, V. Porokhonskyy, A. Pashkin, I. Franke, K. Roleder, J. Suchanicz, R. Klein, and G. E. Kugel, J. Phys.: Cond. Matter **16**, 2719 (2004).
7. V. Dorcet, G. Trolliard, and P. Boullay, Chem. Mater **20**, 5061 (2008).
8. A. M. Balagurov, E. Yu. Koroleva, A. A. Naberezhnov, V. P. Sakhnenko, B. N. Savenko, N. V. Ter-Oganessian, and S. B. Vakhrushev, Phase Transitions **79**, 163 (2006).
9. S. Gorfman and P. A. Thomas, J. Appl. Cryst. **43**, 1409 (2010).
10. I. P. Pronin, P. P. Syrnikov, V. A. Isupov, V. M. Egorov, and N. V. Zaitseva, Ferroelectrics **25**, 395 (1980).
11. C.-S. Tu, I. G. Siny, and V. H. Schmidt, Phys. Rev. B **49**, 11550 (1994).
12. S.-E. Park S.-J. Chung, and I.-T. Kim, Am. Ceram. Soc. **79**, 1290 (1996).
13. M. Geday, J. Kreisel, A. M. Glazer, and K. Roleder, J. Appl. Cryst. **33**, 909 (2000).
14. S. Gorfman, A. M. Glazer, Y. Noguchi, M. Miyayama, H. Luo, and P. A. Thomas, J. Appl. Cryst. **45**, 444 (2012).
15. Т. В. Крузина, В. В. Гене, В. А. Исупов, Е. В. Синяков, Кристаллография **26**, 852 (1981)
16. И. П. Пронин, П. П. Сырников, В. А. Исупов, Г. А. Смоленский, Письма ЖТФ **21**, 1309 (1982).
17. D. O'Neill, R. M. Bowman, and J. M. Gregg, Appl. Phys. Lett. **77**, 1520 (2000).
18. R. A. Cowley, S. Gvasaliya, S. G. Lushnikov, B. Roessli, and G. M. Rotaru, Advance in Physics **60**, 229 (2011).