

Кинетика доменной структуры и токи переключения в монокристаллах конгруэнтного и стехиометрического танталата лития

© В.Я. Шур, Е.В. Николаева, Е.И. Шишкин, В.Л. Кожевников, А.П. Черных

Научно-исследовательский институт физики и прикладной математики Уральского государственного университета, 620083 Екатеринбург, Россия

E-mail: vladimir.shur@usu.ru

(Поступила в Редакцию в окончательном виде 15 февраля 2002 г.)

Проведен сравнительный анализ кинетики переключения поляризации в монокристаллах конгруэнтного и стехиометрического танталата лития LiTaO_3 с использованием одновременной регистрации последовательности мгновенных доменных конфигураций (оптической визуализации эволюции доменной структуры) и тока переключения. Экспериментально обнаружен и с помощью компьютерного моделирования исследован новый механизм быстрой кинетики доменов в конгруэнтном танталате лития за счет роста ступеней, образовавшихся при слиянии доменов. В стехиометрическом танталате лития получена дополнительная информация о кинетике доменов с использованием статистического анализа шумовой компоненты тока переключения. Предложена модель для описания скачкообразного движения доменных стенок.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 01-02-17443), программы „Университеты России: фундаментальные исследования“ (грант № 5563), программы „Научные исследования высшей школы по приоритетным направлениям науки и техники. Электроника“ (грант № 03-02-29) и Американского фонда гражданских исследований и развития для независимых государств бывшего Советского Союза (грант N REC-005).

В последнее время новый класс периодически поляризованных нелинейно-оптических материалов нашел широкое применение при создании источников и преобразователей частоты когерентного излучения, использующих эффект квазифазового синхронизма [1,2]. Танталат лития LiTaO_3 является одним из наиболее важных представителей этого класса благодаря тому, что он обладает большими значениями электрооптического и нелинейно-оптического коэффициентов. Периодическую доменную структуру можно создавать путем приложения электрического поля к системе периодических электродов [3–5], нанесенных с помощью фотолитографии. В последние годы при изготовлении нелинейно-оптических устройств предпринимаются попытки перейти от конгруэнтного танталата лития (CLT) к стехиометрическому (SLT), обладающему значительно меньшей концентрацией дефектов. Показано, что при этом не только существенно уменьшается фоторефракция и качественно изменяется форма доменов, но и на порядок уменьшается величина коэрцитивного поля [6]. Однако кинетика доменной структуры при переключении поляризации в SLT к настоящему времени практически не исследована. Особый интерес представляет комплексное изучение процессов переключения с сопоставлением одновременно полученных результатов прямых и косвенных методов. Недавно для CLT было показано, что кинетику доменов можно наблюдать при помощи оптического микроскопа непосредственно в процессе переключения [7]. В настоящей работе представлены результаты измерения тока переключения и непосредственного наблюдения эволюции доменной структуры в CLT и SLT, а также

проанализированы механизмы, определяющие кинетику доменов.

1. Эксперимент

Эксперименты проводились в монокристаллических образцах коммерческого CLT (Crystal Technology, CA) LiTaO_3 и в образцах танталата лития с составом, близким к стехиометрическому (SLT), выращенных по методу Чохральского с использованием двойного тигля в National Institute of Materials Science, Tsukuba, Japan [8]. Концентрация вакансий лития в CLT составляла около 2%, а в образцах SLT — 0.3%. Исследуемые образцы представляли собой монокристаллические пластины размером $6 \times 5 \text{ mm}$ вырезанные перпендикулярно полярированной оси. Толщина образцов CLT составляла 0.2 mm, а SLT — 0.9 mm. Переключение проводилось прямоугольными импульсами поля с помощью прозрачных электродов диаметром 1 mm из жидкого электролита (водный раствор LiCl). При изучении образцов SLT, кроме того, использовались нанесенные методом реактивного распыления прозрачные электроды $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Sn}$ (ITO) диаметром 2.5 mm. Все измерения производились при комнатной температуре.

Непосредственное наблюдение эволюции доменной структуры в процессе переключения во всей переключаемой области (для электродов диаметром 1 mm) осуществлялось при помощи поляризационного микроскопа в проходящем свете. Последовательность мгновенных изображений записывалась на видео с частотой 25 кадров в секунду. Одновременно фиксировался ток пере-

ключения по традиционной методике. Таким образом была реализована уникальная возможность, позволяющая установить соответствие между особенностями тока переключения и кинетикой доменов. Для количественного анализа использовалась последующая компьютерная обработка изображений. Измерения показали, что CLT и SLT качественно различаются не только формой доменов, но также и кинетикой доменной структуры и как следствие формой тока переключения.

2. Кинетика доменов в конгруэнтном танталате лития

При переключении доменной структуры в CLT впервые удалось экспериментально наблюдать новый механизм доменных стенок, ранее предложенный нами для объяснения кинетики доменов в германате свинца [9,10].

Переключение из монодоменного состояния в CLT после включения поля (подачи прямоугольного импульса) начинается с практически мгновенного (по сравнению с временем переключения) появления большого количества маленьких доменов с плотностью, достигающей 1000 mm^{-2} (рис. 1, *a*). В дальнейшем образование доменов полностью прекращается и переключение осуществляется только за счет роста доменов. Удает-

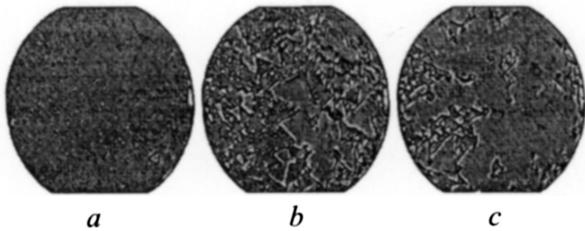


Рис. 1. Оптическое наблюдение эволюции доменной структуры непосредственно в процессе переключения под действием прямоугольного импульса поля в CLT: 0.3 (*a*), 0.9 (*b*) и 1.5 s (*c*) от момента включения поля. Диаметр переключаемой области 1 mm. $E = 190 \text{ kV/cm}$.

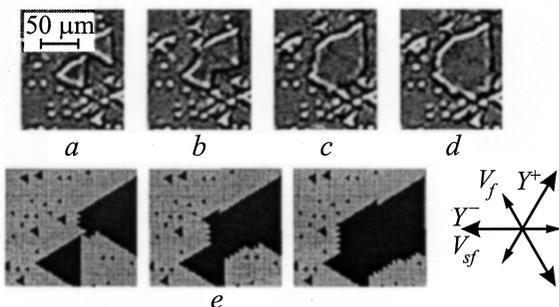


Рис. 2. Быстрое движение доменной стенки в Y^+ -направлениях и образование сверхбыстрой зигзагообразной доменной стенки, движущейся в Y^- -направлениях в CLT: 0.7 (*a*), 0.8 (*b*), 0.9 (*c*) и 1 s (*d*) от момента включения поля. $E = 190 \text{ kV/cm}$. *e* — результаты моделирования кинетики доменов.

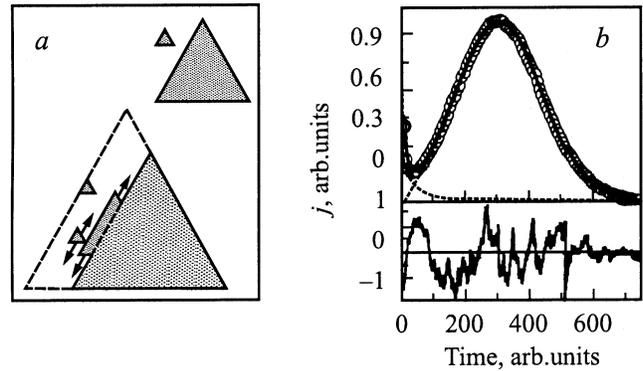


Рис. 3. *a*) Схема роста домена (штриховая линия — окончательное положение доменной стенки). *b*) Ток переключения и его шумовая компонента, полученные в результате моделирования. Аппроксимация зависимостью (1).

ся выделить два различных механизма роста доменов: 1) чрезвычайно медленный рост изолированных доменов (со скоростью v_s); 2) быстрое движение доменных стенок после слияния доменов с существенной анизотропией (различием скоростей в Y^+ - и Y^- -направлениях) (рис. 1, *b, c*). Быстрое движение доменной стенки (со скоростью v_f) в трех Y^+ -направлениях является результатом генерации ступеней на доменной стенке за счет слияния движущейся стенки с одиночными изолированными доменами и последующего роста ступеней (рис. 2). Кроме того, при слиянии крупных доменов формируются сверхбыстрые (supermobile) зигзагообразные доменные стенки с большой концентрацией ступеней (рис. 2, *c, d*), что приводит к аномально быстрому (со скоростью v_{sf}) движению доменных стенок в Y^- -направлениях. Типичные значения скоростей движения доменных стенок, полученные в результате статистического анализа последовательностей мгновенных изображений, для переключения в поле 190 kV/cm составили $v_s \sim 1 \mu\text{m/s}$, $v_f \sim 20\text{--}60 \mu\text{m/s}$, $v_{sf} \sim 130 \mu\text{m/s}$. Очевидно, что при таком соотношении скоростей процесс переключения определяется не ростом индивидуальных доменов за счет пристеночного зародышеобразования [10–12], а ростом ступеней, возникающих в результате слияния доменов. Следует отметить, что обсуждаемый механизм качественно отличается от обычно используемой при анализе токов переключения модели Колмогорова–Аврами [13,14], основанной на рассмотрении роста индивидуальных доменов.

Проводилось компьютерное моделирование процесса переключения в CLT в соответствии с предложенным механизмом. Единственным параметром модели являлась плотность случайно распределенных зародышей, образующихся на первом шаге моделирования. Моделировалось переключение только за счет роста ступеней, образовавшихся при слиянии доменов (рис. 3, *a*), а рост индивидуальных доменов не рассматривался. Полученные доменные конфигурации и форма тока пе-

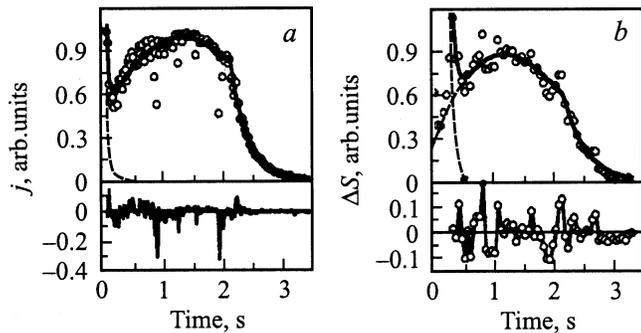


Рис. 4. Традиционный (*a*) и оптический (*b*) токи переключения и их шумовые компоненты в CLT. $E = 190 \text{ kV/cm}$. Аппроксимация зависимостью (1).

реключения (рис. 3, *b*) качественно подобны результатам эксперимента (рис. 2 и 4), что подтверждает применимость предложенного механизма эволюции доменов. Детальное обсуждение результатов моделирования будет представлено нами в отдельной публикации.

3. Ток переключения в конгруэнтном танталате лития

При рассматриваемом механизме переключения каждый элементарный акт перестройки доменной структуры — слияние доменов или быстрый рост ступеней — сопровождается генерацией элементарного импульса тока переключения. В CLT большая исходная плотность изолированных доменов приводит к большому числу одновременно происходящих событий. При измерении тока переключения суммируются элементарные импульсы по всей переключаемой области, и поэтому обычно наблюдается гладкий токовый импульс с незначительной шумовой компонентой (рис. 4, *a*).

Для количественного сопоставления тока переключения и кинетики доменной структуры при компьютерной обработке изображений доменной структуры был получен „оптический ток переключения“, пропорциональный изменению переключаемой площади $\Delta S(t)$ между последовательными мгновенными доменными конфигурациями (рис. 4, *b*). Из рис. 4 видно, что оптический ток, полученный для всей переключаемой площади, подобен одновременно измеренному по общепринятой методике току переключения. Разрешение по времени оптического тока сравнительно невелико, однако использование этого метода позволяет определить оптический ток переключения для любой части переключаемой области, что открывает уникальную возможность связать особенности формы тока переключения с конкретными процессами перестройки доменной структуры.

Детальный анализ мгновенных доменных конфигураций позволил выделить три механизма эволюции доменов, которые использовались нами при выборе адекватного математического описания формы тока переключе-

ния. Ток переключения аппроксимировался суммой двух токовых компонент

$$j(t) = j_1(t) + j_2(t) = At^{-\gamma} - 2P_s dq/dt. \quad (1)$$

Первая компонента тока $j_1(t)$ соответствует процессу слияния исходных маленьких изолированных доменов. При малой исходной концентрации доменов (в слабом поле) наблюдается лишь частичное переключение, которое завершается образованием изолированных доменов с большой дисперсией размеров. Традиционно первая компонента тока переключения не рассматривается, поскольку ее относят на счет „диэлектрического вклада“, обусловленного перезарядкой сегнетоэлектрического конденсатора.

Вторая компонента тока $j_2(t)$ наблюдается только при достаточной плотности зародышей (в сильном поле). Ее зависимость от времени включает две стадии, которые могут быть аппроксимированы модифицированной нами формулой Колмогорова–Аврами [15], используемой обычно для анализа экспериментальных токов, с изменением размерности роста от двумерного к одномерному (геометрической катастрофой) $\alpha(2D) \rightarrow \beta(1D)$:

$$q(t) = k_1 \exp[-(t/t_{01})^3], \quad t < t_{\text{cat}}, \quad (2)$$

$$q(t) = k_2 \exp[-(t - t_{\text{cat}})/t_{02}], \quad t > t_{\text{cat}}, \quad (3)$$

где k_1, k_2 — доли площади, t_{01}, t_{02} — константы времени, t_{cat} — время катастрофы.

Такой анализ позволяет определить эффективную скорость бокового движения и скорость зародышеобразования. Обсуждение альтернативных методов анализа формы тока для рассмотренного механизма переключения будет опубликовано нами позднее.

Из анализа изображения ясно видно, что на первой стадии преобладает образование и рост доменов ($\alpha(2D)$ -процесс) (рис. 1, *b*), а на второй — коалесценция доменов за счет аннигиляции доменных стенок ($\beta(1D)$ -процесс) (рис. 1, *c*).

Следует отметить, что такой метод анализа может быть применен для извлечения информации о кинетике доменов из результатов измерения обычного тока переключения без прямых оптических наблюдений кинетики доменов в процессе переключения.

Скачкообразная перестройка доменной структуры приводит к значительной немонотонности тока переключения и появлению шумовой компоненты (шумам Баркгауза). Эта компонента может быть получена вычитанием аппроксимационной кривой из тока переключения (рис. 4). Элементарные акты перестройки доменной структуры, приводящие к отдельным скачкам, были выявлены путем анализа мгновенных доменных конфигураций.

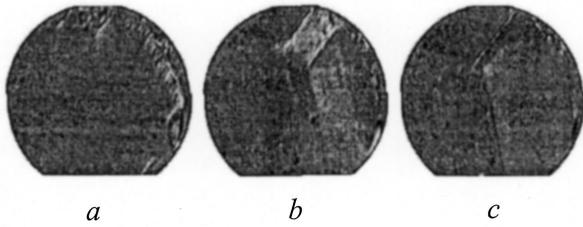


Рис. 5. Оптическое наблюдение эволюции доменной структуры непосредственно в процессе переключения в постоянном поле в SLT с жидкими электродами: 2.4 (a), 4.44 (b) и 10.32 s (c) от момента включения поля. Диаметр переключаемой области 1 mm. $E = 32$ kV/cm.

4. Кинетика доменной структуры в стехиометрическом танталате лития

Кинетика доменов в SLT исследовалась как при переключении в поле, так и при самопроизвольном обратном переключении после выключения поля [4,16]. Видно, что формы доменов в CLT и SLT качественно различаются (ср. рис. 1 и 5). В SLT изолированные домены имеют форму гексагональных призм и пирамид (для несквозных доменов), как и при переключении ниобата лития с помощью жидких электродов [17,18], в отличие от треугольных призм и пирамид, наблюдавшихся в CLT [17,18].

Кинетика доменов в CLT и SLT также существенно различается. После включения поля под краями электрода в SLT образуется несколько гексагональных доменов (рис. 5, a). Дальнейшая кинетика доменной структуры определяется скачкообразным движением небольшого числа доменных стенок, строго ориентированных вдоль выделенных кристаллографических направлений (рис. 5, b, c). Стенки останавливаются и после некоторого „времени отдыха“ (rest time) быстро перескакивают в новое статическое положение. В результате ток переключения состоит из последовательности индивидуальных коротких токовых импульсов (рис. 6), соответствующих скачкам стенок. Среднее время между импульсами (время отдыха) уменьшается с ростом приложенного поля (рис. 6, a, b). В отличие от случая конгруэнтного ниобата лития [19] эволюция доменов в SLT не зависит от типа используемых электродов (ср. рис. 6, a и c).

5. Анализ шумов Баркгаузена в стехиометрическом танталате лития

Очевидно, что для анализа токов переключения в SLT (как и в ниобате лития) не могут быть использованы классические методы [9,15,20–22], поэтому мы применяли статистические методы анализа, разработанные для исследования шумов.

Исследование частотного спектра показало, что фурье-спектр тока переключения в SLT (рис. 6, d) непрерывен и не содержит выделенных гармоник. Спектр может быть аппроксимирован степенной зависимостью с показателем степени, близким к 0.1.

Статистический анализ токов переключения модифицированным методом Корчака [23] позволил определить кумулятивные функции распределения для длительности индивидуальных токовых импульсов (рис. 7, a) и для времени отдыха (рис. 7, b). Функция распределения для длительности токовых импульсов демонстрирует степенную зависимость как для переключения, так и для обратного переключения с показателями степени 2.8 и 2.0 соответственно. Следует отметить, что такое инвариантное относительно масштабирования поведение типично для самоорганизованных процессов [24].

Для времени отдыха степенной закон, соответствующий самоорганизованному поведению, наблюдается только в узком временном интервале. Поэтому мы аппроксимировали экспериментальные данные формулой, учитывающей ограниченный диапазон скейлинга (upper

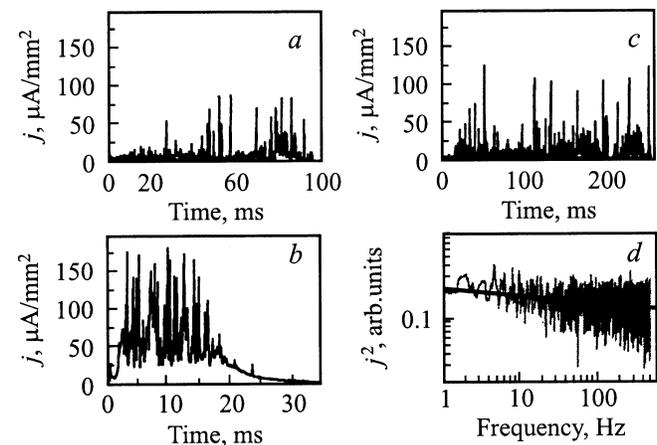


Рис. 6. Токи переключения в SLT. Электроды: a, b — жидкие, c, d — ИТО. E , kV/cm: a, c — 20, b — 33. d — фурье-спектр тока переключения; $E = 25$ kV/cm.

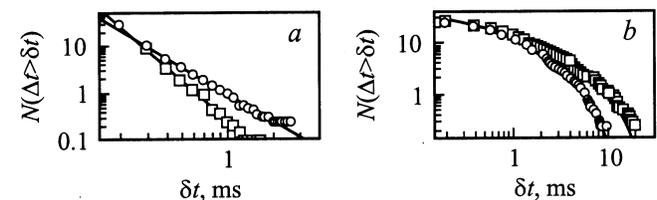


Рис. 7. Анализ токов переключения в SLT: кумулятивные функции распределения длительности токового импульса (a) и времени отдыха (b). a — аппроксимация степенной зависимостью, b — зависимостью (4). Квадраты — переключение, кружки — обратное переключение. Жидкие электроды. $E = 20$ kV/cm.

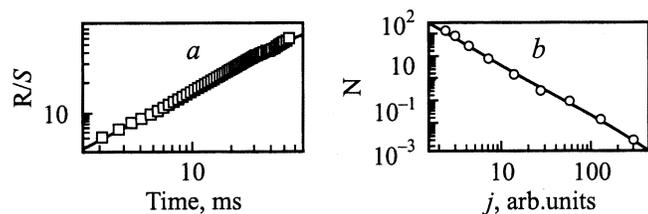


Рис. 8. Анализ токов переключения в SLT: *a* — R/S -анализ, *b* — функция распределения амплитуд токовых импульсов. $E, \text{kV/cm}$: *a* — 20, *b* — 24. Аппроксимация степенной зависимостью.

cutoff) [25],

$$N(\delta t) = B\delta t^{-\alpha} \exp(-\delta t/\xi), \quad (4)$$

где δt — интервал времени, α — показатель стейлинга (scaling exponent), ξ — фрактальное время корреляции.

В результате аппроксимации были определены показатель скейлинга $\alpha = 0.33$ и фрактальное время корреляции $\xi = 5 \text{ ms}$.

При помощи R/S -анализа [24] тока переключения была найдена величина показателя Херста $H = 0.70 \pm 0.05$ (рис. 8, *a*), что является прямым свидетельством персистентности движения стенок с длительным временем корреляции. Известно, что для персистентных стохастических процессов характерно сохранение тенденций с относительно малыми шумами по сравнению с броуновскими (случайными) процессами [24]. Функция распределения амплитуд токовых импульсов во всем диапазоне демонстрирует степенную зависимость с показателем 2.3 (рис. 8, *b*).

Для объяснения полученных результатов был предложен механизм скачкообразного движения доменной стенки. Известно [26,27], что скорость движения плоской доменной стенки уменьшается при смещении из исходного положения. Это замедление вызвано уменьшением локального поля на стенке под действием остаточного (частично скомпенсированного быстрым внешним экранированием) деполаризующего поля, создаваемого связанными зарядами в области за движущейся стенкой [10]. При переключении в полях, незначительно превышающих пороговое значение, этот эффект приводит к остановке стенки после некоторого смещения [27,28]. Очевидно, что дефекты, локально увеличивая пороговое поле, могут играть при этом роль центров пиннинга.

Сила пиннинга и расстояние между центрами определяют степенной закон функций распределения длительностей токовых импульсов и их амплитуд с близкими значениями показателей. Подобная степенная зависимость была получена и при анализе импульсов Баркгаузена, возникающих при движении доменной стенки в магнетиках [29].

Для того чтобы доменная стенка продолжила свое движение, локальное поле должно превысить локальное пороговое значение. Этого удастся достичь во время

отдыха за счет объемного экранирования остаточного деполаризующего поля в результате одновременного действия трех конкурирующих механизмов: 1) перераспределения объемных зарядов [10,30]; 2) переориентация дипольных дефектов [31,32]; 3) инжекция заряда из электродов через диэлектрический зазор [33]. Оценка показывает, что время отдыха для одиночной плоской доменной стенки должно быть существенно меньше постоянной времени объемного экранирования. Кроме того, экспериментально определяемое время отдыха должно уменьшаться за счет того, что в образце одновременно и независимо движется несколько доменных стенок. Такой вывод подтверждается соотношением между полученным нами значением фрактального времени корреляции (5 ms) и экспериментально измеренной постоянной времени объемного экранирования в SLT (40 ms) [34].

Таким образом, в настоящей работе проведено детальное исследование кинетики переключения путем сравнения последовательностей мгновенных доменных конфигураций с током переключения, что позволило выявить в CLT новый для сегнетоэлектриков механизм быстрой кинетики доменов, обусловленной слиянием доменов. Показано, что важную информацию о кинетике доменов в SLT можно извлечь из статистического анализа шумовой компоненты тока переключения. Предложенная модель скачкообразного движения доменной стенки применима и к ниобату лития. Механизмы, объясняющие наблюдаемые различия, будут обсуждены нами в отдельной публикации.

Авторы благодарят К. Kitamura и К. Terabe за представленные образцы стехиометрического танталата лития.

Список литературы

- [1] R.L. Byer. *J. Nonlinear Opt. Mater.* **6**, 549 (1997).
- [2] G. Rosenman, A. Skliar, A. Arie. *Ferroelectrics Rev.* **1**, 263 (1999).
- [3] M. Yamada, M. Saitoh, H. Ooki. *Appl. Phys. Lett.* **69**, 3659 (1996).
- [4] R.G. Batchko, V.Ya. Shur, M.M. Fejer, R.L. Byer. *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1673 (1999).
- [5] В.Я. Шур, Е.Л. Румянцев, Р.Г. Бачко, Г.Д. Миллер, М.М. Фейер, Р.Л. Байер. *ФТТ* **41**, 1831 (1999).
- [6] K. Kitamura, Y. Furukawa, K. Niwa, V. Gopalan, T.E. Mitchell. *Appl. Phys. Lett.* **73**, 3073 (1998).
- [7] V. Gopalan, T.E. Mitchell. *J. Appl. Phys.* **85**, 2304 (1999).
- [8] Y. Furukawa, K. Kitamura, E. Suzuki, K. Niwa. *J. Cryst. Growth* **197**, 889 (1999).
- [9] V.Ya. Shur, A.L. Gruverman, V.V. Letuchev, E.L. Romyantsev, A.L. Subbotin. *Ferroelectrics* **98**, 29 (1989).
- [10] V.Ya. Shur. In: *Ferroelectrics Thin Films: Synthesis and Basic Properties*. Gordon & Breach, N.Y. (1996). Vol. 10. Ch. 6.
- [11] R.C. Miller, G. Weinreich. *Phys. Rev.* **117**, 1460 (1960).
- [12] E. Fatuzzo, W.J. Merz. *Ferroelectricity*. North-Holland Publ. Company, Amsterdam (1967). 280 p.

- [13] A.N. Kolmogorov. *Izv. Acad. Nauk USSR. Ser Math.* **3**, 355 (1937).
- [14] M. Avrami. *J. Chem. Phys.* **7**, 1103 (1939); **8**, 212 (1940); **9**, 177 (1941).
- [15] V.Ya. Shur, E.L. Rumyantsev, S.D. Makarov. *J. Appl. Phys.* **84**, 445 (1998).
- [16] V.Ya. Shur, E.L. Rumyantsev, E.V. Nikolaeva, E.I. Shishkin, D.V. Fursov, R.G. Batchko, L.A. Eyres, M.M. Fejer, R.L. Byer. *Appl. Phys. Lett.* **76**, 143 (2000).
- [17] S. Kim, V. Gopalan, B. Steiner. *Appl. Phys. Lett.* **77**, 2051 (2000).
- [18] V.Ya. Shur, E.L. Rumyantsev, E.V. Nikolaeva, E.I. Shishkin, R.G. Batchko, G.D. Miller, M.M. Fejer, R.L. Byer. *SPIE Proc. Smart Struct. Mater.* **3992**, 143 (2000).
- [19] V.Ya. Shur, E.L. Rumyantsev, E.V. Nikolaeva, E.I. Shishkin. *Appl. Phys. Lett.* **77**, 3636 (2000).
- [20] В.Я. Шур, Е.Л. Румянцев, С.Д. Макаров. *ФТТ* **37**, 1687 (1995).
- [21] В.Я. Шур, С.Д. Макаров, Н.Ю. Пономарев, В.В. Волегов, Н.А. Тонкачева, Л.А. Суслов, Н.Н. Салащенко, Е.Б. Ключенков. *ФТТ* **38**, 1889 (1996).
- [22] V.Ya. Shur, E.L. Rumyantsev, S.A. Makarov, V.L. Kozhevnikov, E.V. Nikolaeva, E.I. Shishkin. *Integrated Ferroelectrics* **27**, 179 (1999).
- [23] J. Russ. *Fractal Surfaces*, Plenum Press, N.Y. (1994). 112 p.
- [24] J. Feder. *Fractal*. Plenum Press, N.Y. (1988). 181 p.
- [25] A. Hasmu, M. Foret, J. Pelous, R. Jullien. *Phys. Rev.* **B48**, 9345 (1993).
- [26] M. Drougard, R. Landauer. *J. Appl. Phys.* **30**, 1663 (1959).
- [27] В.Я. Шур, Е.Л. Румянцев, В.П. Куминов, А.Л. Субботин, Е.В. Николаева. *ФТТ* **41**, 126 (1999).
- [28] V.Ya. Shur, A.L. Gruverman, V.P. Kuminov, N.A. Tonkachyova. *Ferroelectrics* **111**, 197 (1990).
- [29] B. Alessandro, C. Beatrice, G. Bertotti, A. Montorsi. *J. Appl. Phys.* **68**, 2908 (1990).
- [30] В.М. Фридкин. *Сегнетоэлектрики-полупроводники*. Наука, М. (1976). 408 с.
- [31] U. Robels, G. Arlt. *J. Appl. Phys.* **73**, 3454 (1993).
- [32] P. Lambeck, G. Jonker. *J. Phys. Chem. Sol.* **47**, 453 (1986).
- [33] I. Stolichnov, A. Tagantsev, N. Setter, J. Cross, M. Tsukada. *Appl. Phys. Lett.* **74**, 3552 (1999).
- [34] V.Ya. Shur, E.V. Nikolaeva, E.I. Shishkin, K. Terabe, K. Kitamura. *Appl. Phys. Lett.* To be published.