

[Article]

doi: 10.3866/PKU.WHXB2014Ac03

www.whxb.pku.edu.cn

基于密度泛函理论方法的 δ 相Pu 5f状态电子结构计算李如松^{1,*} 何彬¹ 李刚¹ 许鹏¹ 卢新城² 王飞¹¹第二炮兵工程大学核工程系, 西安 710025; ²海军核化安全研究所, 北京 100077)

摘要: 为了描述 δ -Pu中5f电子的定域/离域状态, 获得准确的5f电子布居数, 本文采用多种密度泛函理论方法对5fⁿ ($n=0-7$) 电子构型进行了第一性原理计算. 研究表明, 自旋极化效应明显降低各个电子构型的内聚能, 增强其内聚性质. 对于5f⁰、5f¹、5f³、5f⁴、5f⁶电子构型, 当晶格常数超过0.475 nm时, 自旋极化局域密度近似(SP-LDA)+U方法计算获得的内聚能明显低于SP-LDA方法. 除了5f⁴和5f⁶电子构型以外, 自旋极化广义梯度近似(SP-GGA)+U方法计算获得的内聚能明显低于SP-GGA方法, 当晶格参数超过0.570 nm时, SP-GGA+U和SP-LDA方法计算的內聚能趋向于重合. 对于SP-LDA+U方法, 5f⁰、5f¹、5f³、5f⁴和5f⁶电子构型的内聚能是相同的, 5f²、5f⁵和5f⁷电子构型的内聚能是相同的. 对于SP-GGA+U方法, 5f⁰、5f¹、5f²、5f³、5f⁵和5f⁷电子构型的内聚能是相同的, 5f⁴和5f⁶电子构型的内聚能趋向于重合. 5f投影态密度表明自旋极化效应导致5f轨道产生交换劈裂行为, 部分5f状态从Fermi能级上消失, 降低5f状态对化学成键过程的贡献, 增加了平衡体积, 即强烈的自旋极化效应导致5f电子的“部分定域化”. SP-GGA+U方法明显高估了晶格常数, 而SP-LDA方法计算获得的晶格常数与实验值相当一致.

关键词: 5f状态; 电子结构; 定域状态; 自旋极化

中图分类号: O641; O469

An Electronic Structure Calculation for 5f States of δ Phase Plutonium Based on the Density Functional Theory MethodLI Ru-Song^{1,*} HE Bin¹ LI Gang¹ XU Peng¹ LU Xin-Cheng² WANG Fei¹¹Xi'an Research Institute of High Technology, Xi'an 710025, P. R. China;²Navy Research Institute of Nuclear and Chemistry Safety, Beijing 100077, P. R. China)

Abstract: First-principle calculations of 5fⁿ ($n=0-7$) electronic configurations are performed with several density functional theory (DFT) methods to describe the localized/delocalized states and obtain the precise population of the 5f manifold in delta-plutonium (δ -Pu). The results show that spin polarization clearly reduces the cohesive energies of each electronic configuration, and enhances the cohesion properties. For 5f⁰, 5f¹, 5f³, 5f⁴, and 5f⁶ electronic configurations, the cohesive energies obtained by the spin-polarized local density approximation (SP-LDA)+U method are markedly smaller than that by the SP-LDA method when the lattice constant of δ -Pu exceeds 0.475 nm. The cohesive energies calculated with the spin-polarized generalized gradient approximation (SP-GGA)+U method are smaller than that by SP-GGA method, except for 5f⁴ and 5f⁶ electronic configurations, and the former trend to coincide with SP-LDA results when the lattice constants are larger than 0.570 nm. For the SP-LDA(GGA)+U method, the cohesive energies of 5f⁰, 5f¹, 5f³, 5f⁴, and 5f⁶ (5f⁰, 5f¹, 5f², 5f³, 5f⁵, and 5f⁷) electronic configurations are all equal, while the cohesive energies of 5f², 5f⁵ (5f⁴) electronic configurations are the same as that of the 5f⁷ (5f⁶) electronic configuration. The cohesive energies of 5fⁿ

首届中国锕系物理与化学学术交流会, 四川 绵阳, 2014年8月24–27日.

The First Conference on Chinese Actinide Physics and Chemistry, Mianyang, Sichuan, August 24–27, 2014.

*Corresponding author. Email: rusong231@126.com; Tel: +86-29-84741611.

The project was supported by the National Natural Science Foundation of China (51401237, 51271198, 11474358) and Self-Topics Fund of Xi'an Research Institute of High Technology under Contract, China (2014QNJ018, YX2012cpxy06).

国家自然科学基金(51401237, 51271198, 11474358)和第二炮兵工程大学基金(2014QNJ018, YX2012cpxy06)资助项目

© Editorial office of Acta Physico-Chimica Sinica

electronic configurations calculated using the other methods are equal. $5f$ projected densities of states show that spin polarization results in the exchange split behavior of $5f$ orbitals. Several $5f$ states are removed from the Fermi level, which lowers the contribution of $5f$ states to chemical bonding, and enhances the lattice constant, indicating that strong spin polarization induces partial localization of $5f$ orbitals. The optimized lattice constants obtained by the SP-LDA method are in good agreement with the experimental values, but the SP-GGA+ U method sharply overestimates the lattice constant (by up to about 20%).

Key Words: $5f$ state; Electronic structure; Localization; Spin polarization

1 引言

铜系位于元素周期表中最后一行,其特征是逐渐填充 $5f$ 亚壳层. 94 号元素 Pu 位于具有离域 $5f$ 状态(参与化学成键过程)轻铜系元素和具有定域 $5f$ 状态(化学惰性)的重铜系元素之间.¹ 这个独特的位置导致 Pu 产生许多异常的行为,比如在环境条件下,具有最多的同素异形体金属结构,负热膨胀行为(与水相似), α 相 Pu 具有异常高的电子比热,从低温 α 相转变为高温 δ 相伴随着巨大的体积膨胀(高达 25%).^{2,3} 与大多数常见金属相比, Pu 的基态结晶成低对称性单斜结构(α 相). 实际上,理论学家和冶金学家对 δ 相 Pu 尤其感兴趣,这主要是由于它具有延展性,同时通过添加少量的三价元素(比如 Al, Ga, Am)可使其在室温及其以下温度条件下处于“亚稳定”状态.⁴

然而,目前的理论无法完全描述 Pu 的所有同素异形体. 比如,基于局域密度近似(LDA)或广义梯度近似(GGA)的标准密度泛函理论(DFT)方法预测获得相对较高的晶格参数,以及磁化率实验中没有观察到的非零局域磁矩. 而且,这些计算方法没有描述光电子发射谱的电子态密度(DOS)中 Fermi 能级附近强烈的 $5f$ 电子定域行为.⁵⁻⁸

因此,为了描述 δ -Pu 中 $5f$ 电子的定域/离域状态,分析 $5f$ 电子状态对电子结构和晶格常数的影响,并获得准确的 $5f$ 电子布居数,本文采用多种密度泛函理论方法对 $5f^n$ ($n=0-7$) 电子构型进行了第一性原理计算,获得 $5f^n$ 电子构型内聚能与晶格常数之间的函数关系,分析 Pu $7s$ 、 $6p$ 、 $6d$ 和 $5f$ 投影态密度(PDOS),并将优化的晶格常数与实验值和其他理论值进行对比.

2 计算方法

对于自旋轨道耦合(SOC)问题, Wang 和 Sun⁵ 在 DFT 中自旋极化广义梯度近似(SP-GGA)下,采用全势线性缀加平面波(FP-LAPW)算法,研究结果表明在没有考虑 SOC 的情况下,与 δ -Pu 的非磁数据相

比,反铁磁状态的晶格常数和体积模量与实验值符合得更好. Söderlind¹ 和 Kollar⁹ 等观察到在研究 δ -Pu 的定量行为时, SOC 效应没有明显地影响计算结果. Hay 和 Martin¹⁰ 发现不考虑 SOC 效应能够描述铜系元素及其化合物的电子和几何性质. 实际上, SOC 效应主要影响原子的平衡体积,但是影响程度小于自旋极化(SP)效应.¹¹ 研究结果表明:当考虑 SP 效应时,就能很好地解释 δ 相的亚稳定性.¹² 同时, SP 效应能够改善与实验光电子发射谱之间的一致性,¹ 并且可以重现 Pu 金属正确的相序和 Pu 合金的亚稳定性.¹³ 最近的研究发现 SP-GGA 计算^{1,5,11,14} 能够改善 Pu 各个相及其合金的许多性质:平衡体积、体积模量、弹性性质或能量差别. 因此,本文考虑了 Pu 原子的 SP 效应(模拟了 Pu $5f$ 电子的部分定域行为),在将来的文章中将考虑 SOC 效应,比如采用朱正和和蒙大桥¹⁵ 的全相对论 Dirac 方程描述方法.

本文的具体计算条件如下: Pu 原子采用 $5f^0$ 、 $5f^1$ 、 $5f^2$ 、 $5f^3$ 、 $5f^4$ 、 $5f^5$ 、 $5f^6$ 、 $5f^7$ 电子构型. 采用 SP-LDA+ U (只考虑 Pu $5f$ 电子壳层上的 Coulomb 相互作用, Hubbard U 参数表示对 $5f$ 电子之间 Coulomb 相互作用的修正,下同)、SP-GGA+ U 、LDA 等方法,通过 Shick 等¹⁶ 的“直接”和“交换”参数($U=4.0$ eV 和 $J=0.7$ eV)进行定义. 平面截止能量为 $E_{\text{cut}}=500$ eV,自洽场(SCF)收敛度小于 1.0×10^{-6} eV $\cdot$ atom⁻¹.

3 结果和讨论

各种 DFT 方法计算获得的 $5f^n$ 电子构型内聚能与晶格常数之间函数关系如图 1(a-h)所示.

从图 1(a-h)可以看出,当晶格常数超过 0.450 nm 时, SP-LDA、SP-GGA、SP-LDA+ U 和 SP-GGA+ U 方法计算获得的内聚能明显较低,这表明自旋极化效应(模拟 δ -Pu 中部分定域 $5f$ 状态)增强 $5f^n$ 电子构型的内聚性质. 对于 $5f^0$ 、 $5f^1$ 、 $5f^3$ 、 $5f^4$ 、 $5f^6$ 电子构型,当晶格常数超过 0.475 nm 时, SP-LDA+ U 方法计算获得的内聚能明显低于 SP-LDA 方法,这表明考虑 $5f$

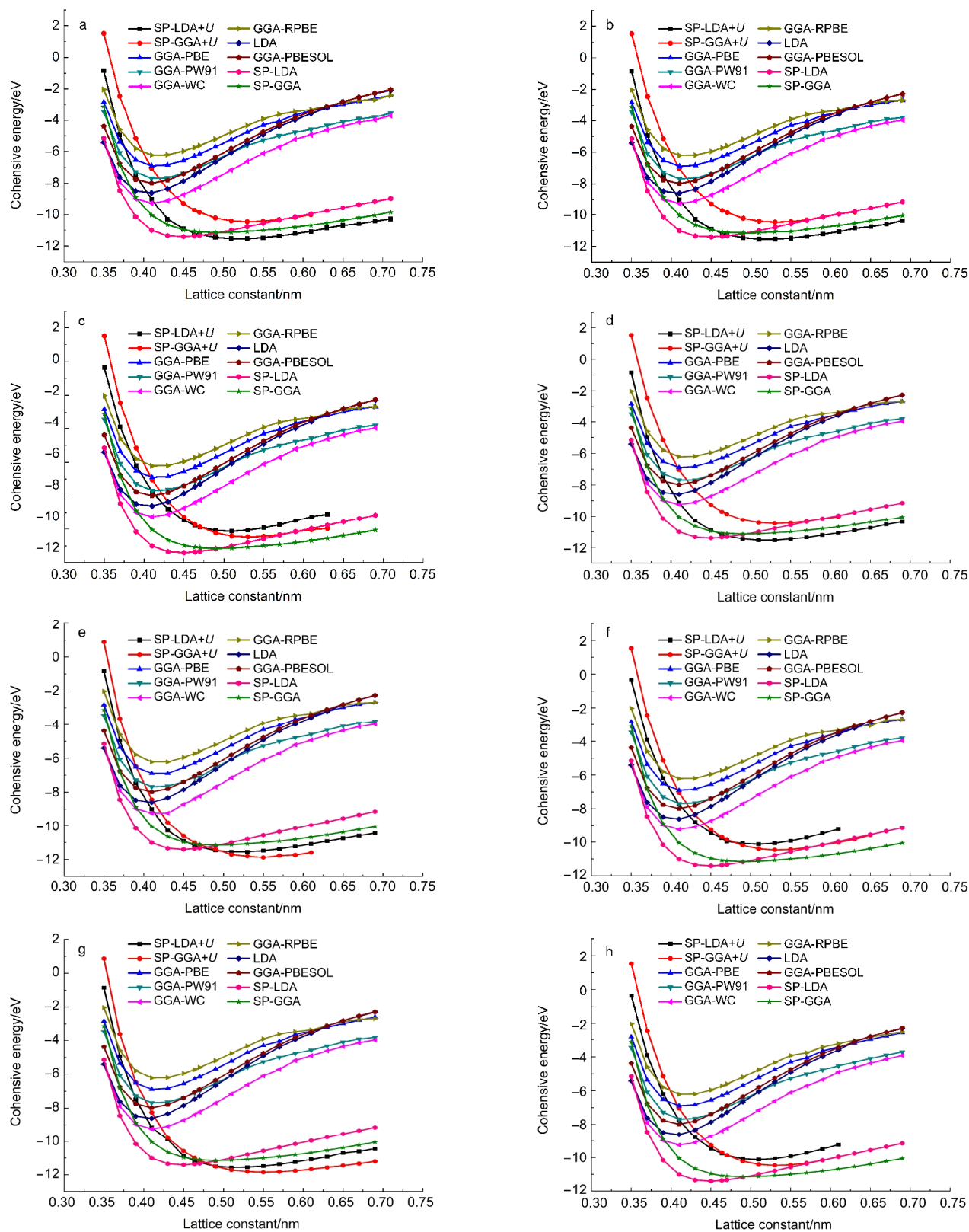


图1 各种DFT方法计算获得的(a) $5f^0$, (b) $5f^1$, (c) $5f^2$, (d) $5f^3$, (e) $5f^4$, (f) $5f^5$, (g) $5f^6$ 和(h) $5f^7$ 电子构型内聚能与晶格参数之间的函数关系

Fig.1 Cohesive energies of (a) $5f^0$, (b) $5f^1$, (c) $5f^2$, (d) $5f^3$, (e) $5f^4$, (f) $5f^5$, (g) $5f^6$, and (h) $5f^7$ electronic configurations calculated by various DFT methods as a function of lattice constant

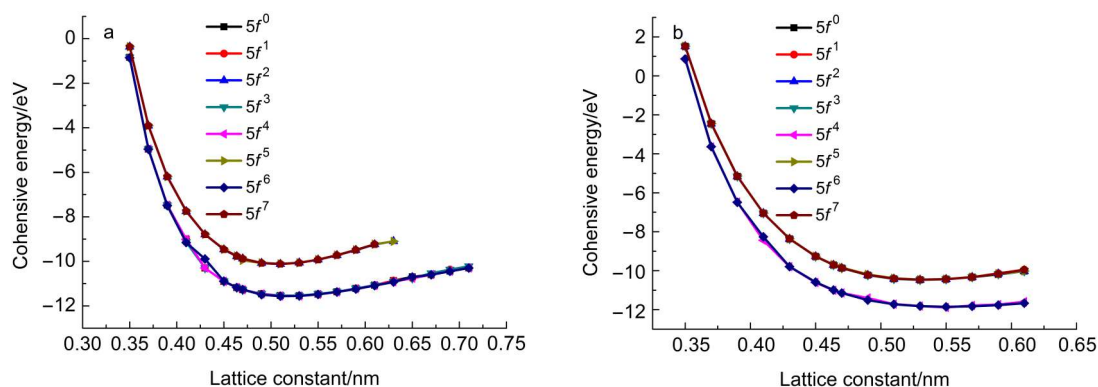


图2 (a) SP-LDA+ U 和(b) SP-GGA+ U 方法计算获得的 $5f^n$ ($n=0-7$)电子构型内聚能与晶格参数之间函数关系
Fig.2 Cohesive energies of $5f^n$ ($n=0-7$) electronic configurations calculated by (a) SP-LDA+ U and (b) SP-GGA+ U methods as a function of lattice constant

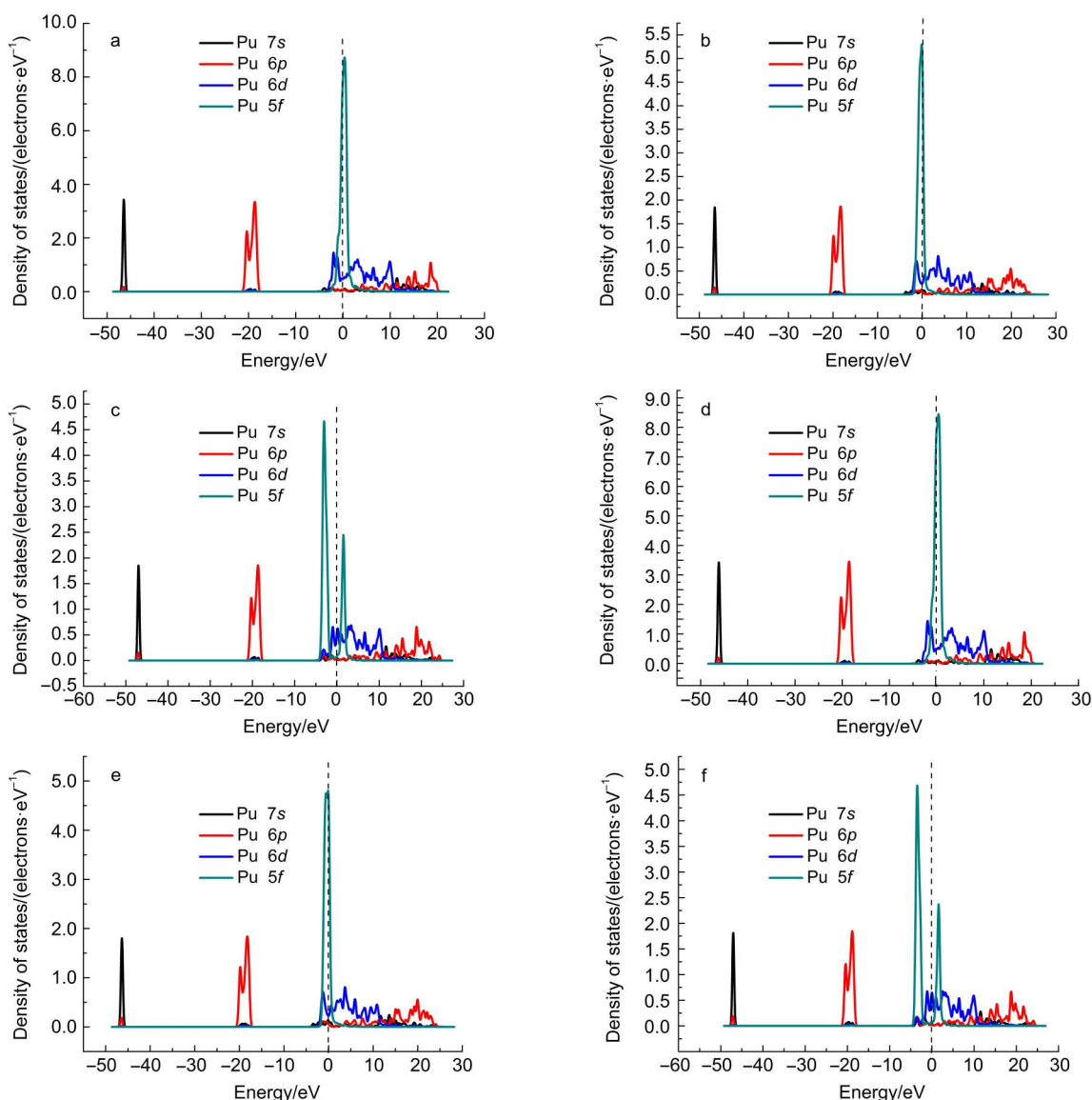


图3 (a) LDA, (b) SP-LDA, (c) SP-LDA+ U , (d) GGA-PBE, (e) SP-GGA和(f) SP-GGA+ U 方法计算获得的Pu 7s, 6p, 6d和5f投影态密度(PDOSs)

Fig.3 Pu 7s, 6p, 6d, and 5f projected density of states (PDOSs) calculated by (a) LDA, (b) SP-LDA, (c) SP-LDA+ U , (d) GGA-PBE, (e) SP-GGA, and (f) SP-GGA+ U methods

电子-电子之间强烈 Coulomb 排斥作用的 Hubbard U 参数将 $5f$ 多重态分解为较低和较高 Hubbard 能带, 降低 Fermi 能级上 $5f$ 自由度, 从而减少内聚能, 增强内聚性质. 除了 $5f^4$ 和 $5f^6$ 电子构型以外, SP-GGA+ U 方法计算获得的内聚能明显低于 SP-GGA 方法. 另一个有趣的现象是, 除了 $5f^4$ 和 $5f^6$ 电子构型以外, 当晶格参数超过 0.570 nm 时, SP-GGA+ U 和 SP-LDA 方法的内聚能趋向于重合, 产生这种现象的一种可能解释是: 与 SP-GGA 计算结果相比, SP-GGA+ U 方法中 $5f$ 电子-电子之间强烈的 Coulomb 排斥作用明显高估了内聚能, 与 SP-LDA 方法系统地高估内聚能的行为相似, 所以两者计算结果趋向于一致.

SP-LDA+ U 和 SP-GGA+ U 方法计算获得的 $5f^n$ 电子构型内聚能与晶格参数之间函数关系如图 2 所示. 从图中可以看出: 对于 SP-LDA+ U 方法, $5f^0$ 、 $5f^1$ 、 $5f^3$ 、 $5f^4$ 和 $5f^6$ 电子构型的内聚能是相同的, $5f^2$ 、 $5f^5$ 和 $5f^7$ 电子构型的内聚能是相同的. 对于 SP-GGA+ U 方法, $5f^0$ 、 $5f^1$ 、 $5f^2$ 、 $5f^3$ 、 $5f^5$ 和 $5f^7$ 电子构型的内聚能是相同的, $5f^4$ 和 $5f^6$ 电子构型的内聚能趋向于重合. GGA-PBE、GGA-PW91、GGA-WC、GGA-RPBE、LDA、GGA-PBESOL、SP-LDA 和 SP-GGA 方法获得的各个 $5f^0$ 、 $5f^1$ 、 $5f^2$ 、 $5f^3$ 、 $5f^4$ 、 $5f^5$ 、 $5f^6$ 、 $5f^7$ 电子构型内聚能是分别相等(本文没有显示), 表明这些方法对 $5f$ 电子构型的内聚性能没有影响.

Johansson 和 Rosengren¹⁷ 研究发现 Pu 固体接近

于 $5f^5$ 构型. Savrasov 等¹⁸ 采用局域密度近似+动态平均场理论的计算结果验证了这个结论. 实际上, Moore 等¹⁹⁻²² 通过电子能量损耗谱和 X 射线吸收谱获得的 α 和 δ 相 Pu 中 $5d$ - $5f$ 原子实-共价转变实验研究结果验证了 Pu 的 $5f^5$ 电子构型. 在 Savrasov 等¹⁸ 获得的总能和体积的关系曲线中存在两个极小值, 极小值的位置正好分别对应于 α 相和 δ 相 Pu 的实验平衡体积, 两个极小值分别对应于 $5f$ 壳层的离域和定域状态, 因此 $\alpha \rightarrow \delta$ 相变是由于 Pu $5f$ 电子的 Mott 定域作用. 对于 $5f^5$ 电子构型, Pu $7s$ 、 $6p$ 、 $6d$ 和 $5f$ 投影态密度(PDOS)如图 3(a-f)所示. 从图中可以看出, $5f$ 电子对态密度起着主要的贡献. 在自旋极化情况下, Fermi 能级上 $5f$ 电子状态减少, 这表明自旋极化效应导致 $5f$ 轨道产生交换劈裂行为, 从而使得部分 $5f$ 状态从 Fermi 能级上消失, 这将抑制 $5f$ 状态对化学成键过程的贡献, 从而增加了平衡体积, 我们可以认为强烈的自旋极化效应导致 $5f$ 电子的“部分定域化”.

从 SP-LDA+ U 计算获得的 DOS(图 3c)可以看出, $5f$ 状态不再与 Fermi 能级相交. 与 LDA 方法获得的大约 9.0 electrons $\cdot$ eV⁻¹ 相比, 采用 SP-LDA 方法获得的 Fermi 能级处 $5f$ 态密度降至 5.25 electrons $\cdot$ eV⁻¹. 实际上, 与 Pu 金属成键行为相关的 $5f$ 电子定域度和体积膨胀行为密切相关, 即如果体积收缩, 那么 $5f$ 电子更加离域, 如果体积发生膨胀, 那么 $5f$ 电子更加定域. 这解释了从 α 相变为 δ 相时体积膨胀的源头.

表 1 各种密度泛函理论方法计算获得 δ 相 Pu $5f^n$ ($n=0-7$) 电子构型的优化晶格常数(单位: nm)
Table 1 Optimized lattice constants (in nm) of $5f^n$ ($n=0-7$) electronic configurations in δ phase Pu obtained by various density functional theory methods

Method	Lattice constant/nm							
	$5f^0$	$5f^1$	$5f^2$	$5f^3$	$5f^4$	$5f^5$	$5f^6$	$5f^7$
GGA-PBE	0.4161	0.4162	0.4162	0.4162	0.4162	0.4162	0.4161	0.4161
GGA-PBESOL	0.4090	0.4089	0.4089	0.4089	0.4089	0.4089	0.4086	0.4090
GGA-PW91	0.4176	0.4176	0.4176	0.4176	0.4176	0.4176	0.4170	0.4173
GGA-RPBE	0.4193	0.4193	0.4193	0.4193	0.4193	0.4193	0.4193	0.4191
GGA-WC	0.4109	0.4109	0.4109	0.4109	0.4109	0.4109	0.4106	0.4110
LDA	0.4046	0.4046	0.4046	0.4046	0.4046	0.4046	0.4048	0.4263
SP-GGA+ U	0.5302	0.5316	0.5311	0.5316	0.5460	0.5338	0.5536	0.5316
SP-LDA+ U	0.5183	0.5183	0.5067	0.5183	0.5139	0.5064	0.5195	0.5067
SP-LDA	0.4736	0.4736	0.4496	0.4736	0.4782	0.4496	0.4755	0.4496
SP-GGA	0.4945	0.4945	0.4496	0.4945	0.5124	0.4946	0.5091	0.4891
LDA+ U (3.0 eV) ^a						0.4580		
LDA+ U (4.0 eV) ^a						0.4780		
experiment value ^b					0.4636			

^alattice constants of $5f^5$ electronic configuration calculated by LDA+ U method ($U=3.0, 4.0$ eV, respectively) in reference;²⁵

^bexperiment value in reference²⁶

这同样支持了 Savrasov,¹⁸ Kotliar,²³ Dai²⁴和 Wong²⁵等的研究结果, 这表明 α 相和 δ 相位于相互作用所致离域-定域转变的两侧. 同样地, GGA、SP-GGA 和 SP-GGA+ U 方法计算结果相似.

对于 $5f^n$ 电子构型, 各种密度泛函理论方法计算及实验获得的优化晶格常数如表 1^{25,26}所示.

从表中可以看出: SP-GGA+ U 方法明显高估了晶格常数(至少高估 14%), 最高接近于 20%($5f^6$ 电子构型). SP-LDA 方法计算获得的晶格常数与实验值 (0.4636 nm)²⁶之间差别较小, $5f^1$ 电子构型的误差最低(2.1%). 从目前普遍接受的 $5f^6$ 电子构型角度考虑, SP-LDA 方法获得的晶格常数与实验值相当一致(误差大约为 3.0%).

4 结 论

总之, $5f$ 电子的定域性质对于描述 δ -Pu 非常重要. 本文采用多种密度泛函理论方法对 $5f^n(n=0-7)$ 电子构型内聚能进行了第一性原理计算, 研究结果表明, 自旋极化效应明显降低各个电子构型的内聚能, 增强其内聚性质. SP-GGA+ U 方法明显高估了晶格常数, 而 SP-LDA 方法计算获得的晶格常数与实验值相当一致. 下一步计划采用包含轨道极化(OP)和 SOC 效应的密度泛函理论方法, 对不同磁性构型(铁磁、反铁磁、顺磁和非磁)和晶格结构(简单立方、面心立方、体心立方、六角密排和简单单斜等)的 δ 相 Pu 进行研究, 并分析 SP、OP 和 SOC 效应对 δ -Pu 物理性质的影响, 以及可变 $5f$ 电子状态对 δ -Pu 相稳定性的效应.

References

- (1) Söderlind, P.; Landa, A.; Sadigh, B. *Phys. Rev. B* **2002**, *66*, 205109. doi: 10.1103/PhysRevB.66.205109
- (2) Boettger, J. C. *Int. J. Quantum Chem.* **2003**, *95*, 380.
- (3) Postnikov, A. V.; Antropov, V. P. *Comp. Mat. Sci.* **2000**, *17*, 438. doi: 10.1016/S0927-0256(00)00064-1
- (4) Hecker, S. S.; Harbur, D. R.; Zocco, T. G. *Prog. Mater. Sci.* **2004**, *49*, 429. doi: 10.1016/S0079-6425(03)00032-X
- (5) Wang, Y.; Sun, Y. J. *Phys.: Condes. Matter* **2000**, *12*, L311.
- (6) Wu, X.; Ray, A. K. *Phys. Rev. B* **2005**, *72*, 045115. doi: 10.1103/PhysRevB.72.045115
- (7) Gong, H. R.; Ray, A. K. *Surf. Sci.* **2006**, *600*, 2231. doi: 10.1016/j.susc.2006.03.021
- (8) Kutepov, A. L.; Kutepova, S. G. *J. Phys. Condes.: Matt.* **2003**, *15*, 2607. doi: 10.1088/0953-8984/15/17/315
- (9) Kollar, J.; Vitos, L.; Skriver, H. L. *Phys. Rev. B* **1997**, *55*, 15353. doi: 10.1103/PhysRevB.55.15353
- (10) Hay, P. J.; Martin, R. L. *J. Chem. Phys.* **1998**, *109*, 3875. doi: 10.1063/1.476988
- (11) Söderlind, P.; Sadigh, B. *Phys. Rev. Lett.* **2004**, *92*, 185702. doi: 10.1103/PhysRevLett.92.185702
- (12) Savrasov, S. Y.; Kotliar, G. *Phys. Rev. Lett.* **2000**, *84*, 3670. doi: 10.1103/PhysRevLett.84.3670
- (13) Sadigh, B.; Wolfer, W. G. *Phys. Rev. B* **2005**, *72*, 205122. doi: 10.1103/PhysRevB.72.205122
- (14) Shorikov, A. O.; Lukoyanov, A. V.; Korotin, M. A.; Anisimov, V. I. *Phys. Rev. B* **2005**, *72*, 024458. doi: 10.1103/PhysRevB.72.024458
- (15) Zhu, Z. H.; Meng, D. Q. *Acta Phys. Sin.* **2011**, *60*, 040301. [朱正和, 蒙大桥. 物理学报, **2011**, *60*, 040301]
- (16) Shick, A. B.; Drchal, V.; Havela, L. *Europhys. Lett.* **2005**, *69*, 588. doi: 10.1209/epl/i2004-10380-5
- (17) Johansson, B.; Rosengren, A. *Phys. Rev. B* **1975**, *11*, 1367. doi: 10.1103/PhysRevB.11.1367
- (18) Savrasov, S. Y.; Kotliar, G.; Abrahams, E. *Nature* **2001**, *410*, 793. doi: 10.1038/35071035
- (19) Moore, K. T.; Wall, M. A.; Schwartz, A. J.; Chung, B. W.; Shuh, D. K.; Schulze, R. K.; Tobin, J. G. *Phys. Rev. Lett.* **2003**, *90*, 196404. doi: 10.1103/PhysRevLett.90.196404
- (20) van der Laan, G.; Moore, K. T.; Tobin, J. G.; Chung, B. W.; Wall, M. A.; Schwartz, A. J. *Phys. Rev. Lett.* **2004**, *93*, 097401. doi: 10.1103/PhysRevLett.93.097401
- (21) Tobin, J. G.; Moore, K. T.; Chung, B. W.; Wall, M. A.; Schwartz, A. J.; van der Laan, G.; Kutepov, A. L. *Phys. Rev. B* **2005**, *72*, 085109. doi: 10.1103/PhysRevB.72.085109
- (22) Moore, K. T.; van der Laan, G.; Haire, R. G.; Wall, M. A.; Schwartz, A. J. *Phys. Rev. B* **2006**, *73*, 033109. doi: 10.1103/PhysRevB.73.033109
- (23) Kotliar, G.; Vollhardt, D. *Phys. Today* **2004**, *57*, 53.
- (24) Dai, X.; Savrasov, S. Y.; Kotliar, G.; Migliori, A.; Ledbetter, H.; Abrahams, E. *Science* **2003**, *300*, 953. doi: 10.1126/science.1083428
- (25) Wong, J.; Krisch, M.; Farber, D. L.; Occelli, F.; Schwartz, A. J.; Chiang, T. C.; Wall, M.; Boro, C.; Xu, R. *Science* **2003**, *301*, 1078. doi: 10.1126/science.1087179
- (26) Pourovskii, L. V.; Katsnelson, M. I.; Lichtenstein, A. I.; Havela, L.; Gouder, T.; Wastin, F.; Shick, A. B.; Drchal, V.; Lander, G. H. *Europhys. Lett.* **2006**, *74*, 479. doi: 10.1209/epl/i2005-10548-5