

超コヒーレント電子ビーム実現の試み

長岡 克己・大島 忠平

早稲田大学各務記念材料技術研究所 ☎169 新宿区西早稲田2-8-26

(1996年9月24日受理)

Some Trials for Developing Coherent Electron Beam

Katsumi NAGAOKA and Chuhei OSHIMA

Kagami Memorial Laboratory for Material Science and Technology, Waseda University
2-8-26 Nishi-Waseda, Shinjuku-ku, Tokyo 169

(Received September 24, 1996)

超伝導状態のクーパ対からの電界放出電子を利用して、超コヒーレント電子ビームの実現を試みている。理論的に予想されるビームのエネルギー半値幅は、従来のものと比較して、3桁近く狭い(0.05 meV以下)が、この狭いエネルギー幅を確認した報告はない。本稿では、この現象を実験的に確認するために我々の研究室で立ち上がりつつある装置と予備実験について報告する。また、この研究テーマ周辺の研究動向についても紹介する。

1. はじめに

電子ビームは、ナノメーター領域の物性を探る最も強力なプローブの1つであり、材料科学・物性研究に不可欠な基礎技術として、幅広く使用されている。現在、実用化されている最もエネルギー幅の狭い電子ビームは、1960年代にシカゴ大学のCrewにより開発された電界放射電子銃であり、今日まで長い間、使用されてきた。この40年間に電子レンズ、エネルギー分析器等の電子光学系の改良が著しく進み、電子ビーム機器の性能(電子顕微鏡の空間分解能や電子分光器のエネルギー分解能)は大幅に向上したが、これに対して電子源の基本的性能は向上していないため、現在、その発展に曇りが見え始めている。このため新たな高性能電子ビームの出現が多く研究者に待たれている。最近、幾つかのグループでエネルギー幅が狭く、方向の揃った高密度電子ビーム(以後、コヒーレント電子ビームと呼ぶ)の開発が始まっている。この開発には、主に2つのアプローチ(共鳴トンネル効果と物質内部の特殊な電子状態の利用)が考えられている。

我々の研究室では後者に相当する、超伝導状態のクーパ対が同じエネルギー状態に落ち込む現象に注目し、

従来の目的値よりはるかにエネルギー分布幅の狭い超コヒーレント電子ビームの開発を試みている。

この小文では、まず、コヒーレント電子ビームの研究に関する最近の動向を紹介し、次に、我々の研究室で立ち上がりつつある装置とその予備実験について報告する。

2. コヒーレント電子ビームの研究

2.1 共鳴トンネル現象の利用¹⁾

金属表面上に吸着した原子、分子の局在準位が、下地金属の伝導帯と同じエネルギー位置にあるとき、その局在準位と同じエネルギーを有する電子は、他の電子に比べて、極端にトンネル確率が高くなる。これが共鳴トンネル現象であり、放出電子のエネルギー分布幅は局在準位のエネルギー幅等で決まる。

現在までに、Plummerら²⁾やGomerら³⁾により、W上に吸着したN₂分子やKの準位を介した共鳴トンネル効果現象が報告されているが、その電界放出電子のエネルギー分布幅は、1 eV前後で、決して狭くない。この理由は、分子が下地金属と化学結合しているため相互作用が大きく、分子の局在準位のエネルギー幅が広がられているためと考えられる。一方、大きな分子が金属表面に物

理吸着した場合、電界放出電子スペクトルに分布幅の狭い電子構造が現われることが報告されている。図1に、Swansonらにより観測されたフタロシアニン分子の吸着したMo<110>針からの電界放出電子スペクトルを示す¹⁾。曲線1は清浄表面からのスペクトルで、曲線2, 3は分子吸着表面からの印加電圧が異なるスペクトルである。スペクトル2, 3は室温で測定されたにもかかわらず、エネルギー分布幅の狭い（最も狭い時、40 meV）ピークが観察され、印加電圧によってその位置が動くことが確認されている。印加電圧とピーク位置の関係を図1中の挿入図に示す。これは電場によって吸着分子の局在準位が下地金属のフェルミ準位に対して相対的に変化し、共鳴トンネルが起きるエネルギー位置がシフトすると説明される。

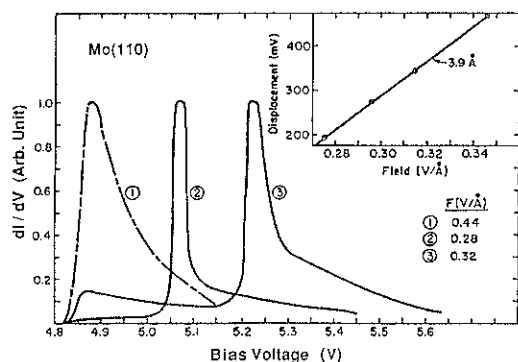


図1 フタロシアニン分子が吸着したMo<110>針からの電界放出電子スペクトル

(1) 清浄表面 ($F=0.44$ V/Å), (2) フタロシアニン分子吸着表面 ($F=0.28$ V/Å), (3) フタロシアニン分子吸着表面 ($F=0.32$ V/Å)。(挿入図) ピーク位置の電場依存性

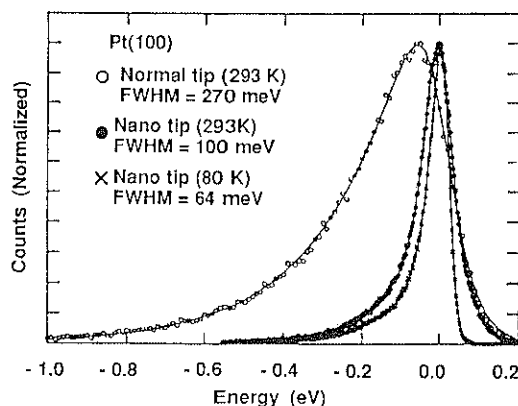


図2 Pt<100>針からの電界放出電子スペクトル

○: ナノ突起形成前 (293 K), ●: ナノ突起形成後 (293 K), ×: ナノ突起形成後 (80 K)

最近、Binhらは曲率半径が100 nm前後の針先端に、原子が数個の微小な突起（以後、ナノ突起と呼ぶ）を電界表面融解法により作製し⁴⁾、このナノ突起からの電界放出電子のエネルギー分布を測定した^{5, 6)}。その結果、分布幅の狭い電子スペクトルを観察したと報告している。図2にナノ突起作製前後のPt<100>針からの電界放出電子スペクトルを示す⁶⁾。ナノ突起がある場合にはエネルギー幅64 meVのスペクトルを得ている。この現象はナノ突起の局在準位を介した共鳴トンネル現象として説明されているが、この共鳴トンネルのエネルギー位置、強度は金属針を変えると大きく変わり、その詳細は今後の研究を待たなければならない。同様の現象がW<111>金属針でも観測されている^{5, 6)}。

また、Ohshimaらにより、GaAs針先端に電子のエネルギー障壁層 (AlAs) と量子井戸層 (GaAs) を設け、量子井戸内に形成された電子準位を介した共鳴トンネル電界電子放出の実験が行われている⁷⁾。理論的には、室温においてエネルギー分布幅が約30 meVの電子ビームを放出すると予想されているが、現在までのところ、実現していない。

2.2 固体内部の電子状態の利用

コヒーレント電子ビーム発生他の方法として、低仕事関数表面からの電界電子放出と、高い状態密度の電子状態からの電界電子放出が試みられている。

図3に、Finkらにより測定されたW表面上に吸着した1個のCs原子からの電界放出電子スペクトルを示す⁸⁾。比較のため、Cs原子吸着前のW表面からのスペクトルも示す。両者を比較すると、Cs原子からの電界放出電子のほうが、W表面からのものに比べ、エネルギー分布幅が狭く、強度が強い。これは、W表面上のCs原子吸着により仕事関数が2 eV程度低下したためである。事実、実測スペクトルのエネルギー分布幅は、Fowler-Nordheim理論（以後、FN理論と呼ぶ、次章で詳しく述べる）から期待される値に一致する。

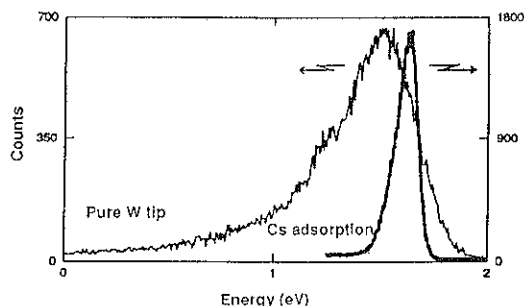


図3 W上に吸着したCs原子からの電界放出電子スペクトル
(1) 清浄表面, (2) Cs原子吸着表面

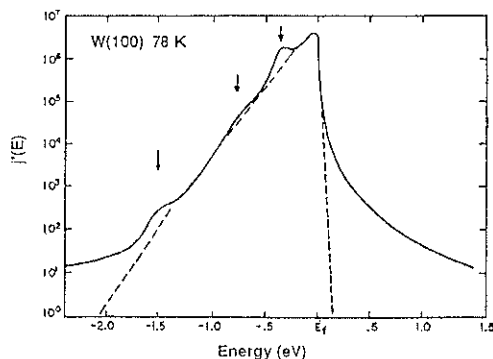


図4 W(100)表面からの電界放出電子スペクトル

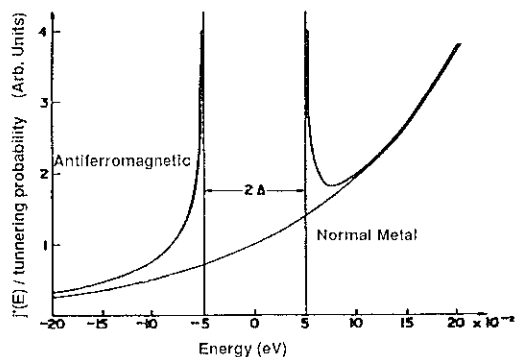


図5 反強磁性Crからの電界放出スペクトル（理論値）をトンネル確率で割ったもの（反強磁性Crの電子状態密度に等しい。）

電界放出電子のエネルギー分布は放出面の電子状態密度にも依存する。図4にPlummerらが測定したW(100)表面からの電界放出電子スペクトルを示す⁹⁾。スペクトル中のピークの位置と<100>方向のエネルギー分散曲線に強い相関が指摘されている。

バンド構造を利用する例として、Osborneにより計算された反強磁性Crからの電界電子放出が提案されている¹⁰⁾。図5に、Crからの電界放出電子スペクトル理論曲線をトンネル確率で割ったもの（ほぼ、Crの電子状態密度に等しい）を示す。この場合、反強磁性Cr内で、電荷密度波の励起によってフェルミ準位近傍にエネルギーギャップが生じ¹¹⁾、そのギャップ下端に高い状態密度のバンドが形成される。このギャップの存在は赤外吸収分光¹²⁾、トンネル分光¹³⁾により確認されているが、残念ながら電界電子放出に関する実験報告はまだない。この例は、室温動作の超コヒーレント電子ビーム実現の可能性を示唆しており、きわめて興味もたれる。

最近、我々の研究室では、Gadzukが理論的に予測した、超伝導状態からの電界電子放出¹⁴⁾による超コヒーレ

ント電子ビームの実現を検討している。これは極端に狭いエネルギー状態に縮退する超伝導クーパ対を利用するものであり、このクーパ対を形成する電子を電界放出させると、エネルギー分布幅のきわめて狭い（0.05 meV以下）電子ビームが得られる可能性が予測されている。この電子ビームが実現すれば、電子ビームの干渉性が著しく向上し、多くの電子ビーム機器の大幅な性能向上が期待できる。我々の研究室では、この超コヒーレント電子ビームを実験的に確認するために、高分解能電子分光器、極高真空容器、および、液体ヘリウム用クライオスタットから構成される装置を立ち上げつつある¹⁵⁾。さらに、最近、単結晶Nb<111>針を作製し、電界放出電子分光の予備実験を開始した¹⁶⁾。以下の節では、これらの研究の現状について紹介する。

3. 超伝導体からの電界放出

電界放出は、固体中の電子が、強い電場（数十MV/cm以上）により薄くなった表面ポテンシャル障壁を、トンネル効果により透過し、真空中に放出される量子力学的現象である。電界放出電子スペクトル $j'(e)$ は、FN理論¹⁷⁾より、次のように与えられる。

$$j'(e) = \frac{J_0}{d} e^{\epsilon d} f(e) \quad (1a)$$

$$1/d = (2m/\hbar^2)^{1/2} \times (2\phi^{1/2}/eF) \quad (1b)$$

$$= 1.025 \times (\phi^{1/2}/F) \quad (1c)$$

ここで、 e : フェルミ準位を基準にしたエネルギー、 J_0 : $T=0$ Kでの全放出電流密度、 ϕ : 仕事関数、 $f(e)$: フェルミ分布関数、 d は式(1c)で記述される電場 F に比例した値である。このFN理論曲線は多くの実測スペクトルをうまく再現するが、式の導出において平らな放出面を仮定し、自由電子近似しているため、理論と実験は必ずしも、一致するとはかぎらない。最近、Cutlerらにより放出面の形状¹⁸⁾や、Modinosらによりバンド構造¹⁹⁾を考慮した計算がなされ、第一原理に基づいた計算²⁰⁾もTsukadaらにより始められている。

次に、超伝導状態からの電界電子放出¹⁴⁾は、電子状態密度の変化に基づいて以下のように説明される。超伝導状態では、フェルミ準位近傍にいた電子はクーパ対を形成し同じエネルギー状態に落ち込む。これにより、フェルミ準位上にエネルギーギャップを生じ、ギャップ下端の電子状態密度が高くなる（図6）。よって、超伝導状態からの電界放出電子スペクトル $J'_e(e)$ は、電子状態密度を反映した係数 $R(e)$ とFN理論スペクトル $j'(e)$ の積で与えられる。ここで、 $R(e)$ はBCS理論より、次の式で表される。

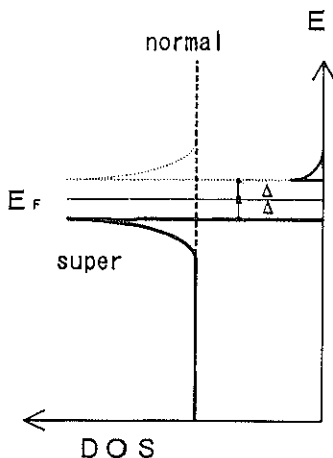


図6 超伝導、常伝導状態の電子状態密度の比較

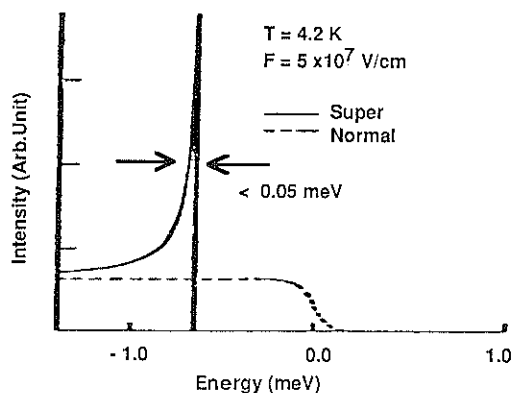


図7 超伝導体からの電界放出電子スペクトル理論曲線

$$R(\varepsilon) = \frac{|\varepsilon|}{\sqrt{\varepsilon^2 - \Delta^2}} \quad (2)$$

ここで、 Δ は超伝導エネルギーギャップ幅である。式(2)より計算した超伝導Nb(臨界温度 $T_c = 9.2$ K, $T = 0$ Kでエネルギーギャップ $\Delta = 1.4$ meV)からの電界放出電子スペクトル $J_1(\varepsilon)$ を図7に示す。この理論曲線はフェルミ準位以下 Δ 付近にきわめて鋭いピークを有し、その分布幅は0.05 meV以下と予想されている。

今までに、超伝導状態からの電界電子放出は度々実験されてきた。1950, 1960年代にGomerら²⁰⁾とKleinら²¹⁾は、それぞれ、NbとTaの超伝導臨界温度前後(Nb: 9.2 K, Ta: 4.5 K)の放出電流量と放射分布を測定したが、いずれも、電子分光器を搭載していなかったため、臨界温度前後のクーパ対発生による電子放出の変化を検出することはできなかった。また、1985年にBergeretら²²⁾は、電子放出の際に起こる加熱現象(Nottingham効果)

を観測し、放出電流量が200 μ AまでNb針が超伝導状態を維持することを実験的に確認したが、電子分光器のエネルギー分解能が十分高くなかったため、同様に、超伝導状態からの電界放出電子を検出することはできなかった。したがって、超コヒーレント電子ビームの存在を実験的に確認するためには、高度な実験技術が必要とし、特に、次の3つの実験技術は本研究遂行にあたり必要不可欠である。

(1) 極高真空-極低温の試料表面は残留ガス吸着によりきわめて汚染されやすい。安定に電界電子放出を行うためには、放出面を長時間、清浄に保たなければならない。つまり、試料周辺を極高真空に保つ必要がある。

(2) 高分解能電子分光器-超伝導状態から電界放出される電子のエネルギー分布幅はきわめて狭い。この電子を常伝導からの電子と識別し、その存在を確認するためには、0.5 meV程度の高分解能を有する電子分光器が必要となる¹⁴⁾。

(3) 極低温技術-超伝導状態を実現するためには試料を臨界温度以下に冷却する必要がある。Nbの臨界温度は9.2 Kと低く、極低温技術を駆使して装置設計を行わなければならない。

4. 高分解能電界放出電子分光装置¹⁵⁾

上記の研究遂行条件(極低温、極高真空、エネルギー分解能0.5 meV程度の電子分光器)を満たす装置が、現在、我々の研究室で立ち上がりつつあり、その概要を紹介する。

極高真空容器は、特殊なステンレス鋼(クリーンZ, NKK)で製作し、組み立て前に600 $^{\circ}$ Cで真空焼き出しした。200 $^{\circ}$ C, 20時間のベーキング後、容易に極高真空(2×10^{-9} Pa)に達し、さらに、クライオスタットに液体ヘリウムを注入すると、圧力はエキストラクターゲージの測定限界(1×10^{-10} Pa)以下に到達する。この真空は電界放出中にも保たれる。

エネルギー分析器は、高いエネルギー分解能を得るために、偏向角107.5 $^{\circ}$ 静電円筒型電子分光器を3段重ねたものを製作した(図8)。この電子分光器の設計分解能は1 meV以下である。一般に、電界放出用の電子分光器のエネルギー分解能の評価はYoung-Kuyatt法²³⁾で行われているが、この方法では、数meV以下の分解能の範囲で精度が極端に悪くなるため、我々は、分光器の構造を利用した新しい方法を開発した。それは、1, 2段目を通した電子ビームのスペクトルを3段目の分光器で測定し、測定スペクトルから分光器全体のエネルギー分解能を概算する方法である。現在までに、最も良い動作条件において、半値幅1.5 meVのスペクトルが観測されており、

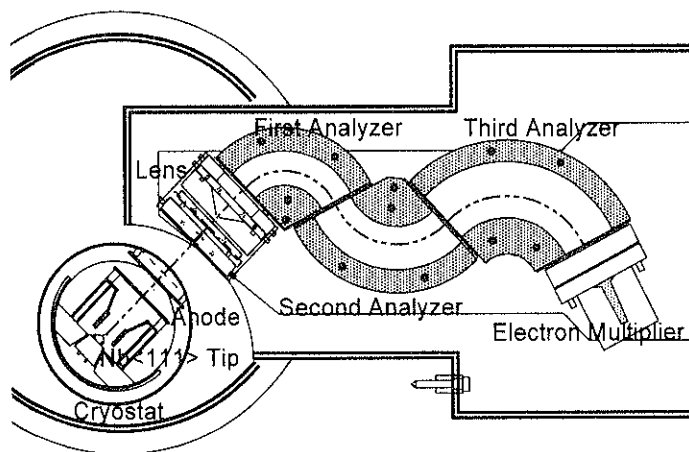


図8 高分解能電子分光器の概念図

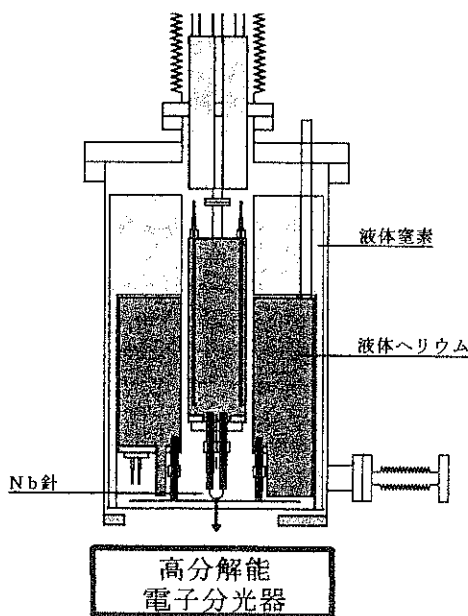


図9 液体ヘリウム用クライオスタットの概念図

この値から3段全体の分解能は0.8 meV程度まで到達していると概算される¹⁵⁾。

この装置では放出面を超伝導状態にするため、液体ヘリウム用クライオスタットを用いて試料を臨界温度以下に冷却する必要がある。つまり、クライオスタット設計では熱流入を最小限に抑え、試料との熱伝導を良くしつつ、電子銃の各電極に高電圧を印加するため、絶縁を良くし、熱輻射の影響を小さくする必要がある。しかしながら、今回製作したクライオスタットの到達温度は、構造的欠陥により、40 Kで、Nbの超伝導臨界温度には到達

しなかった。このため、現在、Bergeretら²¹⁾の経験に基づき、4.2 Kまで冷却可能なクライオスタット(図9)を製作している。近い将来、この小文で述べた超コヒーレント電子ビームの存在を確認することが可能になる。

5. 単結晶Nb針の作製と電界放出電子分光の予備実験¹⁶⁾

効率良く電界電子放出を行うためには、低仕事関数面を針先端にする必要がある。我々は、(111)表面を針先端にもつNb単結晶針を次の手順で作製した。

まず、フローティングゾーン法により成長させた大型単結晶Nb(10 mmφ)の<111>結晶方位を、X線ラウエ法で決め、放電加工機で角柱状(0.5×0.5×8 mm 図10a)に切り出し、機械研磨で円筒状(0.3 mmφ)に加工した。さらに、化学研磨で研磨層を落としてNb線(0.2 mmφ以下 図10b)を得た後、超高真空中のアニールにより結晶性を向上させ、最終的に、単結晶Nb線を電解研磨法により先鋭化した(図10c)。Nb酸化物の蒸気圧は低く、フラッシュ加熱による清浄化は困難であるため、電界蒸発法により清浄化した²²⁾。この清浄化方法は温度上昇を伴わないため、極低温実験との整合性も良い。作製したNb単結晶針の電界電子放出特性(FNプロット)より、針先端の曲率半径が約1000 Åであり、また、その傾きの変化から、残留ガス吸着により仕事関数が約0.1 eV増加することが見積もられた。このNb単結晶針を用い予備実験を行った。そこで得られた結果を次に紹介する。

まず、室温、および、77 KでNb <111>単結晶針からの電界放出電子分光を行った。その結果、両方の温度において、フェルミ準位から600 meV深いエネルギー位置

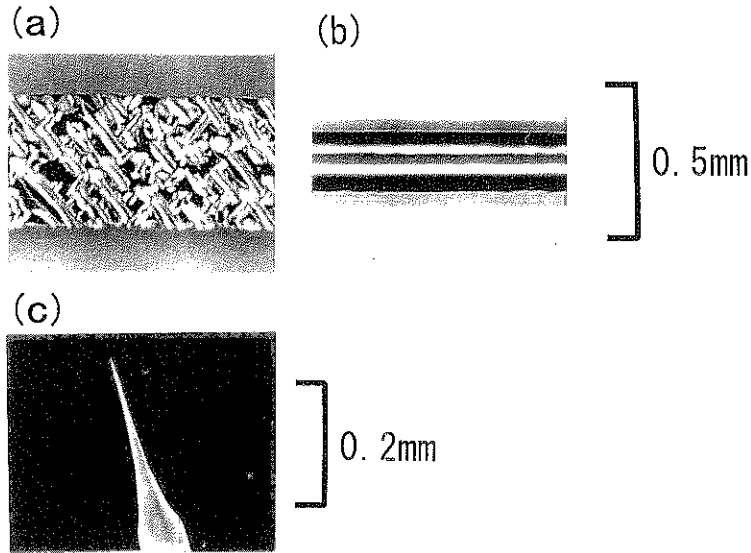


図10 単結晶Nb顕微鏡写真

(a) 切り出し後, (b) 化学研磨後, (c) 電解研磨後

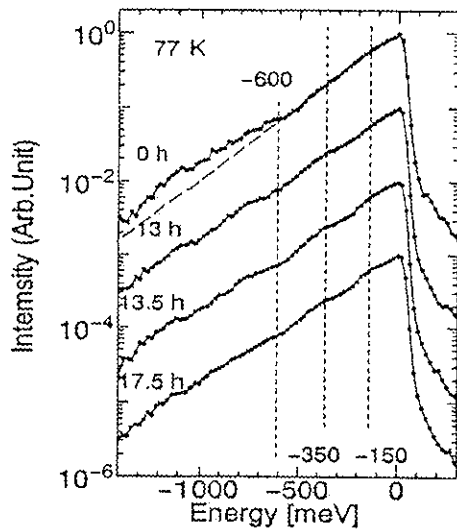


図11 Nb <111> 針からの電界放出電子スペクトル時間依存性 (77 K)

に小さいピークが現われた。77 Kにおけるスペクトルの時間変化の様子を図11に示す。この600 meVのピーク強度は時間経過と共に弱まり、新たに、-350、-150 meV付近にピークが現われた。これらの実験結果より、-600 meV付近のピークはNb(111) 清浄表面の電子状態を反映し、-350、-150 meVのピークは吸着原子による電子状態に起因すると同定される。

図12に、77 Kで測定したフェルミ準位近傍の高分解能スペクトルを示す。真空中に長時間、放置すると、主

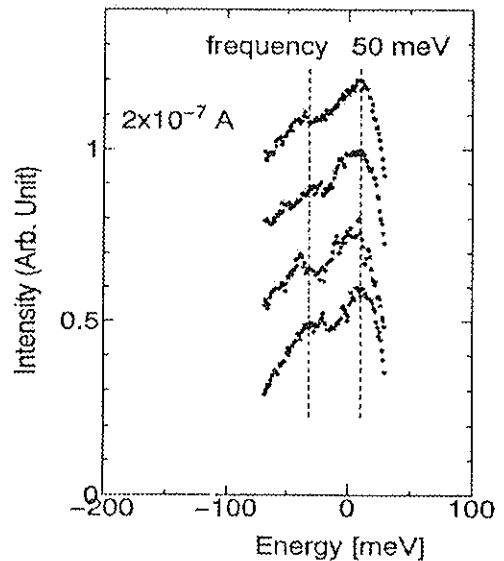


図12 Nb <111> 針からの電界放出電子の高分解能スペクトル (77 K)

ピークから60 meV離れたエネルギー位置に弱いピークが再現性良く現われた。このエネルギーは、FranchyらによるNb(110) 表面のHREELS測定²⁶⁾より得られたNbOのNb-O伸縮の振動エネルギー(63 meV)とほぼ一致するため、このピークはNb針表面でのNb-O伸縮振動に起因すると考えられる。理論的にも、このような針先端の表面原子振動が、電界放出電子分光により検出可能であることをFloodが指摘しており²⁷⁾、実験的には、W

上の水素、重水素の原子振動が、Plummerらにより報告されている²⁶⁾。これらのデータは、ナノメートル領域の原子振動分光の可能性を示している。

6. 今後の課題

新しいクライオスタットの製作によって、近い将来、我々の目標である超コヒーレント電子ビームの存在確認が可能になると考えている。しかし、このビームの存在が確認されても、超コヒーレント電子ビーム実用化のためには、解決すべき問題が山積みされている。

まず、実用化のためには、超コヒーレント電子ビームを常伝導状態から放出される通常の電子から分離しなければならない。このため、新しい単色器の開発や、共鳴トンネル現象との複合利用技術開発が不可欠である。その1つとして、第1章で述べたナノ突起の利用があげられる。このナノ突起からの電界電子放出は新しい電子銃として、以下の魅力的な特徴をもつ。(1) 狭いエネルギー分布幅の実現の可能性。(2) ナノ突起先端に電界が集中し、突起のすぐ前に形成される狭いポテンシャル井戸²⁹⁾により、電子の放出角度が狭くなる³⁰⁾。(3) 電子放出領域がきわめて狭いため残留ガス吸着に対して鈍感で、放出電流量が安定している^{6, 9)}。

この新しい視点からの電子源の検討と、さらに安定化した電子源実現のためには、電子源材料として、より不活性な金属化合物を用いることが重要である。例えば、Nb針表面の炭化、窒化があげられる。NbCやNbN表面は残留ガスの吸着確率が低く、吸着した際でも、その仕事関数の変化は小さい一方、これらの金属化合物の超伝導臨界温度は比較的高い(NbC: 11.1 K, NbN: 15.7 K)。このことはエネルギーギャップの幅を増大させ、クーパー対の密度も増加させ、実験を容易にさせる。このため、材料開発の観点からの検討も必要となろう。

最後に、酸化物超伝導体からの高分解能電子スペクトルの重要性を指摘したい。高いエネルギー分解能の電子スペクトルは、高温超伝導を担うクーパー対の生成機構に関する情報を詳細に知る可能性を有し、BednorzとMüllerによる発見以来謎とされている高温超伝導機構解明の貴重なデータを提供すると期待される。

謝 辞

本研究は、「さががけ研究21」「構造と機能物性」のテーマとしてスタートし、日本学術振興会の“産学共同事業”より支援していただきました。さががけ研究21統括責任者の高良和武先生および学振141委員会の志水隆一先生に深く感謝いたします。また、この研究に参加し

て努力を惜しまなかった大学院学生諸氏(吉野 学, 須藤博史, 荒井紀明, 小川裕之, 内山士郎, 山下哲胤)に感謝します。

文 献

- 1) L.W. Swanson and L.C. Crouser: *Surf. Sci.* **23**, 1 (1970).
- 2) E.W. Plummer, J.W. Gadzuk and R.D. Young: *Solid State Commun.* **7**, 487 (1969).
- 3) L. Schmidt and R. Gomer: *J. Chem. Phys.* **42**, 3573 (1965).
- 4) V.T. Binh and N. Garcia: *Ultramicroscopy* **42-44**, 80 (1992).
- 5) V.T. Binh, S.T. Purcell, N. Garcia and J. Doglioni: *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2527 (1992); V.T. Binh, S.T. Purcell and N. Garcia: *Phys. Rev. Lett.* **70**, 2504 (1993).
- 6) S.T. Purcell, V.T. Binh and N. Garcia: *Appl. Phys. Lett.* **67**, 436 (1995).
- 7) T. Ohshima, M. Okamoto and K. Kuroda: *Jpn. J. Appl. Phys.* **34**, L1390 (1995).
- 8) R. Morin and H.W. Fink: *Appl. Phys. Lett.* **65**, 2362 (1994).
- 9) E.W. Plummer and R.D. Young: *Phys. Rev. B* **1**, 2088 (1970); E.W. Plummer and J.W. Gadzuk: *Phys. Rev. Lett.* **25**, 1493 (1970).
- 10) C.F. Osborne: *J. Phys. F. Metal Phys.* **1**, 416 (1971).
- 11) S. Asano and J. Yamashita: *J. Phys. Soc. Jpn.* **23**, 714 (1967).
- 12) A.S. Barker Jr., B.I. Halperin and T.M. Ria: *Phys. Rev. Lett.* **20**, 384 (1968).
- 13) L.Y. Shen: *J. Appl. Phys.* **40**, 5171 (1969).
- 14) J.W. Gadzuk: *Surf. Sci.* **15**, 466 (1969).
- 15) C. Oshima, N. Arai, K. Nagaoka, H. Ogawa, M. Yoshino and H. Sutoh: *J. Vac. Soc. Jpn.* **37**, 108 (1994).
- 16) K. Nagaoka, H. Ogawa, S. Uchiyama, T. Yamashita, C. Oshima and S. Otani: *Surf. Sci.* **357-358**, 218 (1996).
- 17) R.D. Young: *Phys. Rev.* **113**, 110 (1959).
- 18) J. He and P.H. Cutler: *Appl. Phys. Lett.* **59**, 1644 (1991).
- 19) A. Modinos: *Surf. Sci.* **70**, 52 (1978).
- 20) M. Tsukada: *Surf. Sci. Rep.* **13**, 265 (1991).
- 21) R. Gomer and J.K. Hulm: *J. Chem. Phys.* **20**, 1500 (1953).
- 22) R. Klein and L.B. Leder: *Phys. Rev.* **124**, 1050 (1961).
- 23) H. Bergeret, A. Septier and M. Drechsler: *Phys. Rev. B* **31**, 149 (1985).
- 24) R.D. Young and C.E. Kuyatt: *Rev. Sci. Instrum.* **39**, 1477 (1968).
- 25) E. Krautz and G. Haiml: *Z. Metallkde.* **72**, 116 (1981).
- 26) R. Franchy, V.U. Bartke and P. Gassmann: *Surf. Sci.* (to be published).
- 27) D.J. Flood: *J. Chem. Phys.* **52**, 1355 (1970).
- 28) E.W. Plummer and A.E. Bell: *J. Vac. Sci. Technol.* **9**, 583 (1972).
- 29) N.D. Lang: *Phys. Rev. B* **63**, 1499 (1989).
- 30) A. Knoblauch, C. Wilbertz, T. Müller and S. Kalbitzer: *J. Phys. D* **29**, 470 (1996).