

# スピン

## 核物理から生命科学へ

神戸常盤大学 田中正義

### I. はじめに

私が杉本研究室の門を叩いたのが、学部4年生になった昭和40年の春でした。それから10年近く、杉本先生と研究室のスタッフや院生、学部学生の方々のお世話になりました。そこで、私の生涯の研究のキーワードとなる「スピン」との付き合いが始まり、爾後40年以上の長きに亘ってこの「スピン」を追い続けてきました。

ご存じのように（電子）スピンは1925年、オランダ・ライデン大学のエーレンフェストの研究室にいた大学院生のハウシュミットとウーレンベックが、アルカリ原子スペクトルの2重項を説明するために、電子が、軌道角運動量の単位である $\hbar$ の半整数、 $\frac{1}{2}\hbar$ の角運動量を持つことを提案しました。古典論にない新しい自由度、スピンの発見です。

一方、陽子スピンは、その2年後の1927年、アメリカのミシガン大学からニールスボーアの所にやってきたデニソンが、堀健夫の水素分子（オルソ、パラ）の回転バンドのスペクトルの違いから、電子同様にスピンの $\frac{1}{2}\hbar$ であることを発見しました。先走りしますが、本稿の最後で述べるように、パラ水素分子は再び私を虜にして新しい核偏極生成法「超偏極触媒」への道を開いてくれました。

その後電子のg因子が、ほぼ2であることはディラックの相対論的シュレディンガー方程式から証明されましたが、陽子の方は、そう単純には行きませんでした。1933年、シュテルンによる水素分子に対する所謂シュテルン・ゲルラッハの実験によると、g因子は2から大きくずれ、5.59になってしまったことは、陽子がディラック粒子ではなく、ディラック粒子の複合体であることを示唆していましたが、1960年代のゲルマン達のクオークモデルが出るまでは謎でした。しかし、クオークモデルで陽子のg因子の謎が一旦解けたのですが、1980年代末になってCERNのレプトン（ミューオン）深部非弾性散乱の実験から、陽子スピンはクオークが殆ど担っていないことが分かり、その謎を解く努力が今日に至るも続いています。

こうしたスピン物理の流れの中で、1960年代後半から、私はスピンの世界に飛び込みましたが、当時、今もそうですが、杉本先生のご指導の深い意味を全く理解せず、ただ単に手足となることで精一杯の毎日でした。杉本先生は何にも増して実験技術を重視され、18世紀のドイツの博物学者ゲオルク・リヒテンベルクが言ったように、

**Man muß etwas Neues machen, um etwas Neues zu sehen.**

（何か新しいものを見るためには、何か新しいものを作らねばならない。）

の信念をお持ちだったようです。このことは、私のその後の研究生活に決定的な影響を与

えました。即ち、新しい装置を開発し、新しい測定をすることが私の信条になりました。

私の核スピンに関する研究は、3つの期間に大別されます。即ち、第1期：核偏極をプローブとした核反応・核構造の解明、第2期：偏極イオン源開発、第3期：極低温、超強磁場による核偏極生成、及び金属錯体の触媒作用による核偏極生成と生命科学への応用です。以下それぞれについて、何を目指したのか、そして、どのような結果が得られたのかについて、述べて行きたいと思います。

ゾンマーフェルトの空間量子化の実験的検証をドイツ・フランクフルト（後にハンブルク）のシュテルンが始めて以来、分子ビーム NMR 分光法が米国のコロンビア大学のラーやラムゼーへと継承・発展され、多くの核磁気モーメントが測定されてゆき、更に、QED 検証、CP 対称性の破れと言った現代的課題にも多大の貢献をし、シュテルンを始め多くのノーベル物理学受賞者を輩出したことは万人の知るところです。この意味で、杉本先生は日本のシュテルンだと思っているのは私だけではないと信じております。

## II. 第1期：核スピン物理学

### 1) 4 MV バンデグラーフ加速器を用いた $^{11}\text{B}(d,p)^{12}\text{B}$ 反応の反跳核 $^{12}\text{B}$ の偏極及び磁気副準位占有率 <sup>1)</sup>

この研究は、私の博士論文の課題で、この研究を通して、研究企画から、研究推進、論文発表に至るまで、全面的に杉本先生のご指導を受け、研究というものは、全ての体力、知力、根性を叩き込んで初めて成功するものであることを、徹底的に教えて頂き、その後の研究人生の道標となりました。また、それまで学んで来たスピンというものが、決して

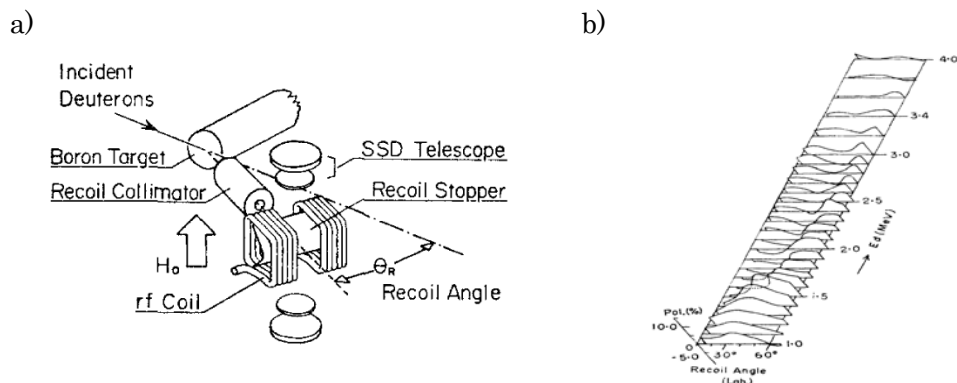


図 1. a) 実験装置 b) 反跳核  $^{12}\text{B}$  の核偏極の角度分布の入射エネルギー依存性

頭の中の創造物（本当はそうかも知れませんが）ではなく、体で感じるものだと教えられたような気がします。図 1-a はその時、作成した実験装置で、 $^{12}\text{B}$  の  $\beta$  線の非対称度を NMR 法で測定し、核偏極を測定できるようになっています。バックグラウンドを減らすのに、何度も装置を作り直したのを覚えています。図 1-b は、測定された反跳核  $^{12}\text{B}$  の核偏極の角度分布の入射エネルギー依存性です。更に、 $^{12}\text{B}$  副準位占有率を測定するため

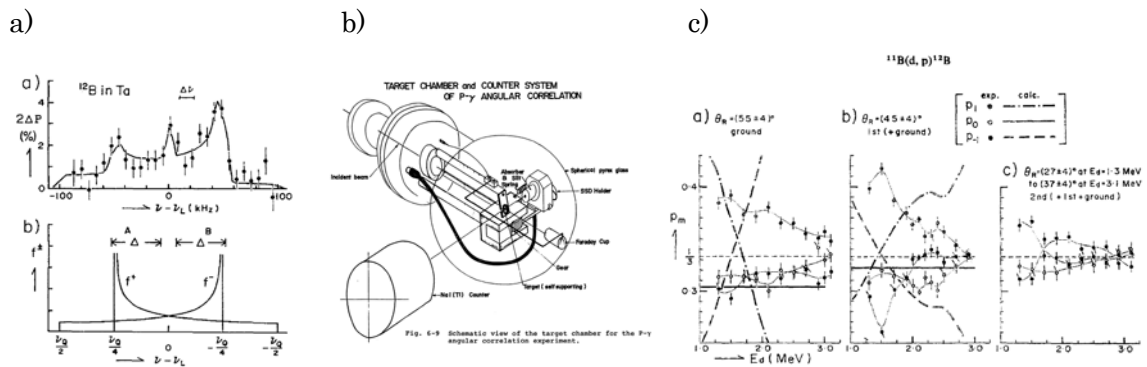


図 2 a) Ta 中の  $^{12}\text{B}$  の NMR スペクトル b) 陽子- $\gamma$  角相関装置 c)  $^{12}\text{B}$  副準位占有率

に、反跳核ストッパーとして Ta を使い、図 2-a の様に 4 重極相互作用により分離した NMR スペクトルを解析して求めた。しかし、4 重極相互作用 (eqQ) の符号が知られていなかったため、 $^{12}\text{B}$  副準位占有率はユニークに決められなかった。そこで、 $^{11}\text{B}(d,p)^{12}\text{B}$  (第一励起準位) が主として起こる反跳核の角度及び入射エネルギーを選び、そこからの  $\gamma$  線と陽子との角相関の実験を、図 2-b のような透明フラスコのなかに粒子検出器とビームストッパーを入れ、外部から粒子検出器の散乱角を変えられる装置で行い、eqQ の符号を決め、 $^{12}\text{B}$  副準位占有率をユニークに決めたのが、図 2-c である。一方、歪波ボルン近似 (DWBA) 法による理論値 (図 2-c 中の曲線) との一致は極めて悪く、スピンの取り扱いの難しさを実感した。コロンビア大学のウー女史がバンデ実験室を訪問され、私の作った陽子- $\gamma$  線角相関装置 (図 2-b) をご覧になられ、「Oh! beautiful」言っ下さったのを今でも覚えている。

## 2) 阪大核物理研究センター (RCNP) サイクロトロン加速器を用いたスピン物理研究

1970 代以降、世界各地で、中間エネルギーの重イオンビームが得られるようになった。重イオンスピン関連の研究を始めたいと思った。しかし、重イオンのスピン軌道相互作用

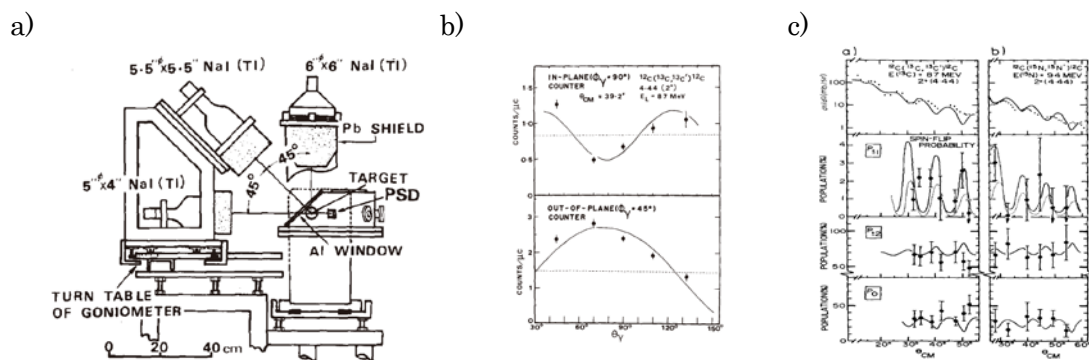


図 3. a) 測定装置 b) 散乱  $^{13}\text{C}$ -4.4MeV  $\gamma$  角相関 c) 実験結果

と考えると、最外殻核子のスピンは内殻の周りの軌道運動の結果、平均化され薄められ、核子の  $1/A$  程度だと考えられるので、より精度の高い測定が求められる。

## 2-1 重イオン・スピントリップ確率の測定による重イオンのスピニ依存力<sup>2)</sup>

ボーアの定理<sup>3)</sup>及び非弾性散乱陽子と $\gamma$ 線角相関を用いたスピントリップ確率の測定は過去多くなされてきたが、重イオン ( $^{13}\text{C}$ ) ビームの  $^{12}\text{C}$  標的に対する非弾性散乱の実験が世界に先駆け行われた。図 3-a に  $\gamma$  線粒子角相関装置を示す。単にスピントリップ確率だけでなく、終状態である  $^{12}\text{C}(2_1^+)$  の磁気副準位占有確率まで測定できるように、角相関を反応面に垂直方向以外に、インプレーン、オフプレーンを測れるように工夫した。図 3-b に角相関の測定結果の一例を、図 3-c に磁気副準位占有確率である。図 3-c 中の曲線は、スピントリップ相互作用を入れた歪波ボルン近似による理論値である。予想に反してスピントリップ相互作用は大きな値になった。この論文が出版されると、何故か杉本先生より、お葉書を頂いた。「良い実験だが、誤差棒が大きいな。」と言う厳しい内容だったように思います。後にも先にも杉本先生からお便りを頂いたのはこの時だけでした。

## 2-2 重イオン・2回散乱による非対称度の測定による重イオンのスピニ依存力<sup>4,5)</sup>

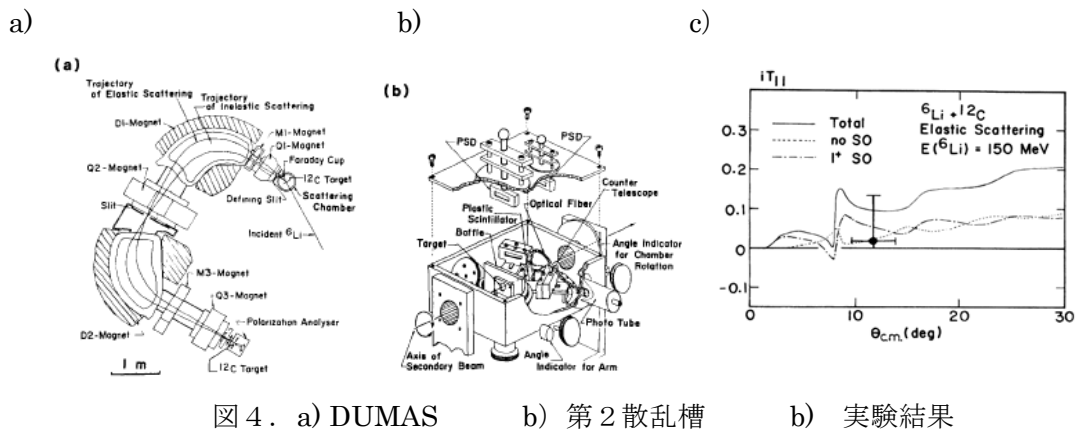


図 4. a) DUMAS b) 第 2 散乱槽 c) 実験結果

何とかして重イオン反応でのスピニ依存力をもっと知ろうと思い、重イオンビームを偏極させようと思ったのが  $^6\text{Li}$  の  $^{12}\text{C}$  による弾性散乱の 2 回散乱の実験でした。図 4-a のように、偏極測定用スペクトログラフ DUMAS を用いて、第 1 散乱槽内の第一  $^{12}\text{C}$  標的で弾性散乱した  $^6\text{Li}$  を DUMAS で分析し、図 4-b の第二散乱槽の  $^{12}\text{C}$  標的に当て、そこで弾性散乱した  $^6\text{Li}$  を半導体位置検出器 (PSD) で測定した。装置のミスアラインメントによる見かけ上の非対称度を補正するため、第二散乱槽は  $^6\text{Li}$  の 2 次ビーム軸の周りに回転できるように設計した。測定は 1 点の散乱角だけに終わった。図 4-c に示すように、歪波ボルン近似で偏極度 (アナライジングパワー) が 10% 程度なので、1% 以上の精度の測定をする必要があったが 2 回散乱実験ではこれ以上誤差棒を短くするのは困難であった。

## III. 第 2 期 : 偏極イオン源開発

### 1) マックスプランク核物理研究所での偏極重イオン源建設<sup>6)</sup>

重イオン物理研究が世界的に盛んになるに連れ、RCNPでも重イオンのスピン物理の重要性から、偏極重イオン源開発が有志によりスタートした。計画の初期には、ドイツ・マックスプランク研究所のMPタンデムで稼働している ${}^6,7\text{Li}$ 、 ${}^{23}\text{Na}$ 等のアルカリ原子の偏極ビームを発生する偏極重イオン源が検討された。

高橋憲明先生のご尽力で、当地に赴き、短期間ではあったが、偏極イオン源開発を手伝う機会を得た。当地ではマールブルク大学のフィック教授が中心になり、後にドイツ・ハンブルク DESY での HERMES 計画（偏極ガスと電子との深部非弾性散乱で核子のスピン構造を解明する）のリーダーになるシュテッフェンスが進めていたプロジェクトに参加した。そこで得られた様々な実験のノウハウや、体制、研究の進め方等は、その後の RCNP での偏極 ${}^3\text{He}$ イオン源開発の大きな助けとなった。

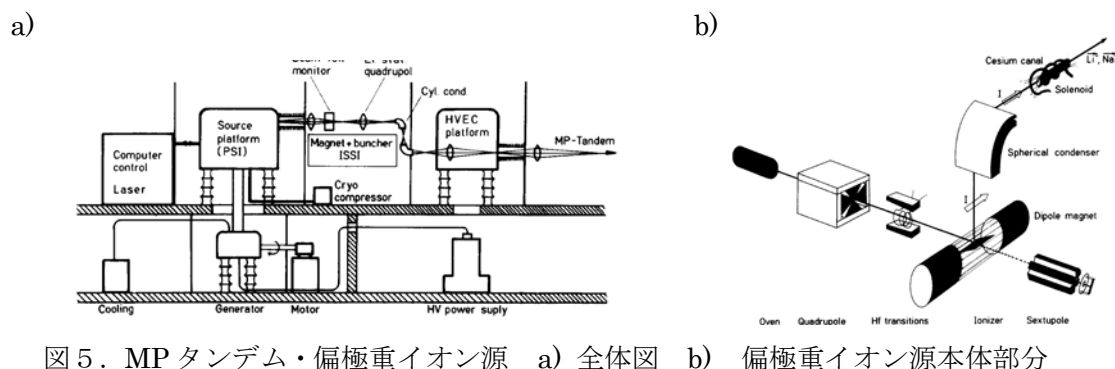


図5-aは、偏極重イオン源全体図で、MPタンデム入射のため、イオン源本体は、入射イオンを150-200 keVの前段加速するため、高圧プラットホーム上に据え付けられている。図5-bにイオン源本体の原理図を示す。アルカリ原子の最外殻電子は水素原子同様、s電子なので、偏極原理は偏極陽子生成とほぼ同じ原子ビーム型偏極イオン源である。ただ、MPタンデム入射では負イオンにしなければならない。そのために、図5-bに示すように、高温のタングステンによる表面イオン化による正イオンとCs蒸気による負イオン化を用いた。偏極測定モニターとして、6極磁場を用いたポーラリメータや光学的手法を用いたビームフォイル分光法が用いられた。ビーム分光法は、RCNPや阪大理学部での偏極 ${}^3\text{He}$ イオン源の偏極モニターとしても使われることになった。

## 2) RCNP及び阪大理学部での偏極 ${}^3\text{He}$ イオン源建設

RCNPではリングサイクロトロン建設にゴーサインが出て、設計が進んでいた。スペクトログラフ・グランドライデンを始めとして様々な測定器の提案があり、これらも多くにゴーサインが出た。RCNP偏極重イオン源は、当初、KEKの森義治氏が偏極陽子ビーム生成に成功した光ポンピング型の偏極イオン源を ${}^3\text{He}$ にも適用することを考え、森氏から余ったレーザー、真空部品、電源等をもって、開発が始まった。

しかし、陽子で出来たことは、 $^3\text{He}$ でもできると、当初考えたのは余りにうかつであった。電子が1個しかない水素原子と電子が2個ある $^3\text{He}$ とは、たかが電子一個ぐらいと思うかもしれないが、偏極の難しさの点において10倍以上のものがあつたと思う。これが体で学び取つた原子の本質かもしれない。

約20年間かけて、光ポンピング型偏極 $^3\text{He}$ イオン源を出発点とし、様々な開発を行つてきた。建設した偏極 $^3\text{He}$ イオン源ベンチテスト装置を数えてみると4台にもなつた。

### 2-1. OPPIS (光ポンピング型偏極イオン源)<sup>7-9)</sup>

偏極電子を原子核の周りの電子軌道に取り込み、超微細相互作用を用いて、核偏極に変換するアイデアは、1950年代のロシアのザボイスキーや1960年代のヘーバリーに始まる。色素レーザーを用いたナトリウムD線の光ポンピング法で偏極したナトリウムの偏極電子

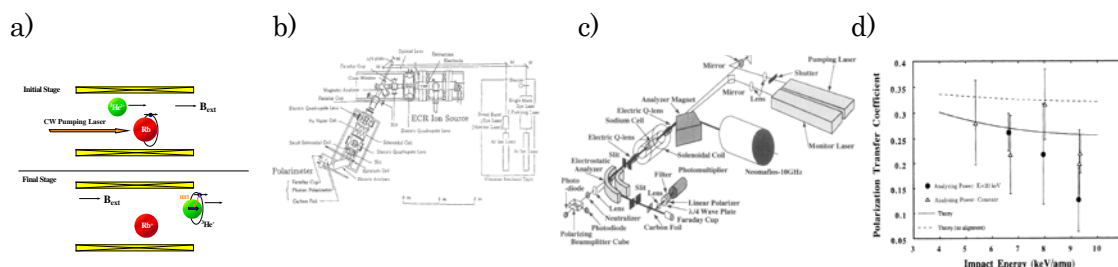


図6. a) 原理 b) OPPIS 装置 (1号機;2.45GHzECR) c) 2号機(NEOMAFIOS) c) 測定結果

捕獲による陽子偏極の可能性をアンダーソン (ウイスコンシン大学) が示し、KEKの森義治氏が実証した。図6-aのようにこの原理を偏極 $^3\text{He}$ 生成に応用した。磁場中でアルカリ蒸気のレーザー光ポンピングにより偏極 $^3\text{He}$ を生成するのは、電子偏極を核偏極に移行する間、微細相互作用 (LS結合) をデカップルする必要性からだ。図6-b, cに装置の概略を示し、図6-dに実験結果を示す。陽子の場合とは異なり、電子から $^3\text{He}$ 核への偏極移行量が30%しかなかったが、入射 $^3\text{He}$ イオンが+2価イオンであるため、磁場が $Z^4$ に比例すると仮定すると、陽子では2Tで十分だが、 $^3\text{He}$ では3.2T必要で、 $^3\text{He}$ では、LS結合がデカップルされていないことを意味する。

### 2-2. EPPIS (電子ポンピング)の実証<sup>10-15)</sup>

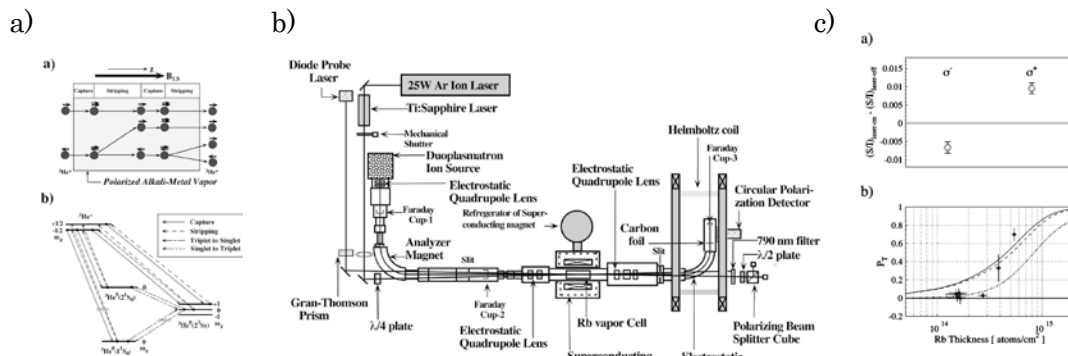


図7. a) 電子ポンピングの原理 b) 実験装置 (3号機;Duoplasmatron) c) 実験結果

$^3\text{He}$ -OPPIS の欠点を補って提案されたのが、電子ポンピング (Electron Pumping) の概念である。この方法では図 7-a のように、入射  $^3\text{He}$  は+1 価を用い、偏極電子の多重捕獲・ストリッピングを用いるので、有効な LS デカップリング磁場は陽子の場合と同様 2 T 程度になる。図 7-a の下部のレベル図に見られるように、偏極電子を多数回捕獲、ストリップして偏極度が増加して行く過程が、光ポンピング法と同じなので電子ポンピング法と名付けられた。図 7-b に示される装置 (3 号機; +1 イオン生成用 Duoplasmatron) を用いて、図 7-c の様に電子ポンピングが実証され、ポンピングが光だけでなく粒子でも可能であることを示すことができた。ちなみに、この電子ポンピングのアイデアが浮かんだとき、私は、急遽アンダーソンが居るウイスコンシン大学のマディソン・キャンパスに赴き、彼の授業終了を待って、その教室で夕闇が迫る頃まで、テキサスなまりの難解な英語に耐えながら電子ポンピングのアイデアを議論したことを昨日の様に覚えている。

### 2-3. SEPIS (Spin Exchange Polarized Ion Source: スピン交換偏極イオン源)<sup>16-20</sup>

EPPIS イオン源の原理は示されたが、大きな欠点もあった。多重電子捕獲・ストリッピング反応では、ストリッピングの断面積が小さいので、アルカリ蒸気の厚さを増す必要があった。その結果、ポンピングレーザーの吸収効果が効いてきて、アルカリ蒸気偏極度

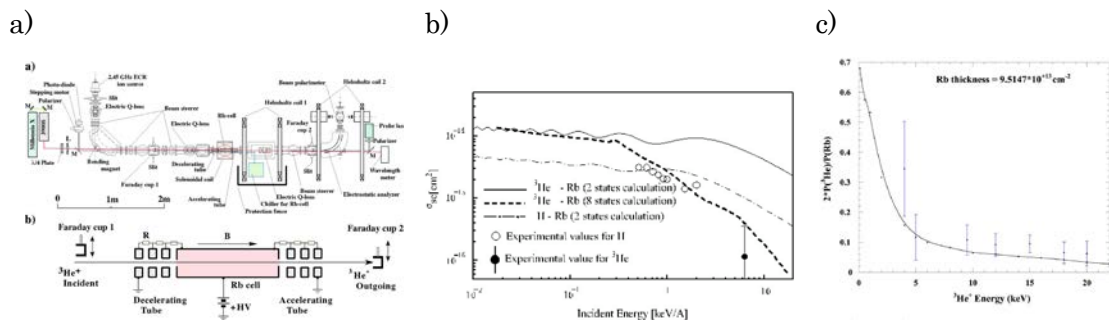


図 8. a) SEPIS 検証実験装置 (4 号機:2.45GHz ECR) b) スピン交換断面積  
c) 偏極移行量のエネルギー依存性

が減少する。更に、 $^3\text{He}^+$ イオンが $^3\text{He}^0$ となり失われ、 $^3\text{He}^+$ イオン収率が減少する。

他の可能性を探るため、 $^3\text{He}^+$ の Rb とのスピンの交換相互作用を広いエネルギー範囲で古典的衝突係数法による理論計算を行った。これは、軌道を古典的に、分子状態を量子力学的に扱う方法で、この領域では信頼性が高い。図 8-b のように低エネルギー (keV 以下) で、スピンの交換断面積が大きくなることが予測された。これを偏極  $^3\text{He}$  イオン源に応用したのが、スピンの交換型偏極  $^3\text{He}$  イオン源 (SEPIS; Spin Exchange Polarized Ion Source) である。低エネルギーでは、スピンの交換断面積が大きく、蒸気厚が薄くても偏極可能である。図 8-a に装置を示す。低エネルギー測定を可能にするため、減速・加速が可能のように、蒸気反応炉に高圧電圧を印加した。松多さんから 1934 年製造印のついたかつてコッククロフトワルトン加速器に使われていた絶縁碍子をお借りした。(この加速器は 1932 年英

国で完成。) 図 8-c に実験結果を示す。低エネルギーで電子から核への偏極移行量の顕著な増加が見られ、原理が実証されたと言える。

#### 2-4. ECRPIS (ECR Polarized Ion Source: ECR 偏極イオンイオン源)の理論的考察<sup>21)</sup>

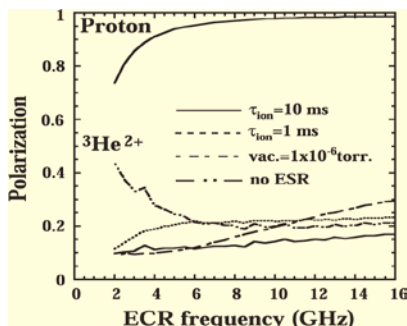


図 9. ECR 磁場強度と偏極度

最後に取り組むべきに課題として、偏極ビームのイオン化がある。EPPIS や SEPIS から得られる偏極  $^3\text{He}$  は +1 価イオンなので、リングサイクロトロンで最大エネルギーを得るには、+2 価イオンに変換して、加速器に入射する必要がある。偏極陽子イオン源から得られた偏極水素原子を ECR (Electron Cyclotron Resonance)イオン化器で、減偏極無しにイオン化するのが一般的だ。 $^3\text{He}^+$ イオンのイオン化に対しても、このイオン化器が有効かどうかは不明だったので、

モンテカルロシミュレーションを用いた思考実験で調べた。図 9 にその結果を示す。横軸は ECR 周波数、縦軸はイオン化された  $^3\text{He}^{2+}$ イオンの偏極度である。陽子では、低周波領域を除いて、減偏極は小さいが、 $^3\text{He}$  では、殆ど全周波数領域で、減偏極が深刻でアイオナイザーとして使えないことがわかった。その違いの大きな理由は、水素原子には 1 個の、 $^3\text{He}$  原子は 2 個の電子が存在していることによる。ECR プラズマ中では、イオンのイオン化と脱イオン化がプラズマ束縛時間の間、起こっている。また、電子の g 因子が、ほぼ 2 なので、電子サイクロトロン共鳴 (ECR) と電子スピン共鳴 (ESR) が同時に起こって減偏極を起こすが、後者の影響は小さい。その結果、 $^3\text{He}^+$ イオンの電子スピンの減偏極が深刻になる。しかし前者の効果は陽子の場合、核電荷が +1 なので、偏極保持磁場が小さい ECR イオン化器でも偏極が保たれるが、 $^3\text{He}^{20}$  の場合は、核電荷が +2 なので、高磁場の偏極保持磁場 (超微細相互作用及び LS 結合のデカップリング) が必要となり、通常の周波数 (< 20 MHz) の ECR イオン化器では偏極保持ができない。水素に比べ  $^3\text{He}$  偏極が如何に困難であるかが身をもって体験した。

#### IV. 第 3 期 : 生命科学への応用<sup>22,23)</sup>

最近、偏極技術を使った生命科学への応用研究を立ち上げた。超偏極核 MRI (核磁気共鳴イメージング) である。通常の MRI は、常温の生体中の陽子偏極 ( $\sim 10^{-6}$ ) を用いるが、超偏極核 MRI では、人工的に大きな核偏極を生成し NMR 信号を 50~10 万倍に増幅した MRI である。この方法を使えば、従来イメージングが困難な  $^{13}\text{C}$ 、 $^{15}\text{N}$  のような生体構成原子核や  $^{19}\text{F}$  のような元々生体に含まれない原子核による MRI 診断が可能になる。更に、イメージングのスキャン時間を従来の数十分からミリ秒程度まで短くした測定が可能になり、生体の代謝機構の動的変化も測定可能となる。

我々は、 $^3\text{He}$  ガスや 人工血液として用いられるパーフルオロカーボン (Per Fluoro Carbon) 中の  $^{19}\text{F}$  の超偏極生成を達成し、肺機能疾患 (現代病と言われる慢性閉塞性肺疾



患等)や循環器疾患の診断を目指す。超偏極化の手法として、 $^3\text{He}$  ガスについては、極低温と高磁場を用いた強制偏極法 (Brute force method) を、 $^{19}\text{F}$  については、パラ水素誘導偏極法 (PHIP: Para Hydrogen Induced Polarization) を開発中である。特に、PHIP 法は化学的な偏極法で、今まで物理屋には余り知られなかったものである。以下に、それらの開発の現状を述べる。

### 1) 超偏極 $^3\text{He}$ ガス生成

超偏極  $^3\text{He}$  ガス生成は、現在までのところ、レーザー光ポンピング法が用いられてきたが、フランス・パリー大学/ドイツ・マインツ大学で共同開発されて来た  $^3\text{He}$  の 2S 準安定状態のスピンの交換を利用した MEOP (Meta-stability Exchange Optical Pumping) 方式

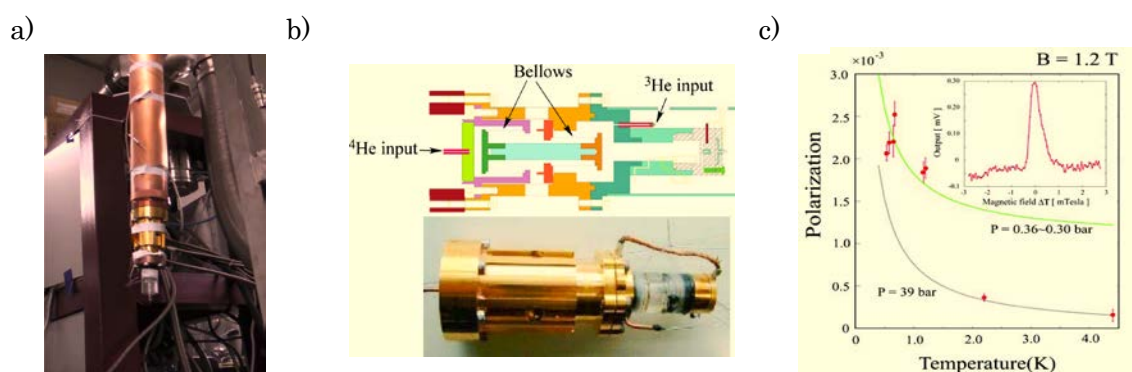


図 10. a) 冷凍機先端部 b) ポメランチュクセル c)  $^3\text{He}$  NMR 信号と偏極の温度依存性

の超偏極  $^3\text{He}$  生成率実績は、1.5ℓ/日程度に過ぎず、高々1日に2~3人程度の患者のMRIイメージングしか取れなく、実用的とは言えない。

我々は、極低温(数 mK)と超強磁場(17T)による強制偏極法 (Brute force method) とポメランチュク冷却を用いた新たな超偏極生成法を開発することにより、数十リットル/日の超偏極  $^3\text{He}$  ガス生成を目指している。図 10-a)はオランダ・ライデンクライオジェニクス社から導入した  $^3\text{He}/^4\text{He}$  希釈冷凍機 (DRS2500) のコールドフィンガーの先端に取り付けられたポメランチュクセル、b) はポメランチュクセル、c) は現時点で測定に成功した  $T=1\text{ K}$  付近、 $B=1\text{ T}$  付近の液体  $^3\text{He}$  の NMR スペクトルと、 $^3\text{He}$  核偏極度の温度依存性である。液体  $^3\text{He}$  はフェルミ流体なので、 $T=5\text{ mK}$ 、 $B=17\text{ T}$  の条件下でも、フェルミ面付近の  $^3\text{He}$  核しか偏極に寄与しないので、大きな偏極は望めない。この困難を打ち破るために、液体  $^3\text{He}$  を極低温で加圧して、固化して大きな偏極度を達成し、液体  $^3\text{He}$  のスピン緩和時間以内の短時間 (~10 秒) で気化する高速融解(Rapid Melting)法の開発を進めている。

### 2) 超偏極 $^{19}\text{F}$ 生成

パラ水素誘導偏極法 (PHIP) によるパーフルオロカーボン (PFC) 中の  $^{19}\text{F}$  原子核の超偏極化を目指す。これは、スピン波動関数が非対称のパラ水素分子による不飽和炭化水



また、阪大の生化学者・赤堀四郎先生はパラジウムを絹に固定した触媒が水素化することを発見されています。赤堀先生は私の大学卒業時の学長でした。学長に色紙を書いて頂いたのを今でも記憶しております。その文面は、「一粒の砂に自然を見、一輪の野の花に宇宙を見る。」と言う趣旨の文章でした。ビッグサイエンスの道を避け、自然と直接対話できるスモールサイエンスの道を選んだ私の研究人生は間違っていなかったと思います。

## 謝辞

杉本記念シンポジウムの一環で本稿にまとめることを勧めて頂いた KEK 名誉教授の中井浩二先生に心から感謝致します。杉本先生が最も脂の乗り切った時代に、杉本研究室の門を敲き、教えを受けることができたことは、私にとって最高の幸せです。

## 文 献

- 1) M. Tanaka et al., Nucl. Phys. **A263** (1976) 1-11.
- 2) M. Tanaka et al., Phys. Lett. **106B** (1981) 293-297.
- 3) A. Bohr, Nucl. Phys. **10** (1959) 486.
- 4) M. Tanaka et al., Phys. Rev. **C36** (1987) 2146-2149.
- 5) M. Tanaka et al., Nucl. Instr. & Meth. **A267** (1988) 139-143.
- 6) D. Krämer et al., Nucl. Instr. & Meth. **220** (1984) 123-132.
- 7) M. Tanaka et al., Phys. Rev. **A41** (1990) 1496-1504.
- 8) T. Ohshima et al. Phys. Lett. **B274** (1992) 163-167.
- 9) M. Tanaka et al., Phys. Rev. **A50** (1994) 1184-1196.
- 10) M. Tanaka et al., Phys. Rev. **A52** (1995) 392-397.
- 11) T. Yamagata et al., Nucl. Instr. Meth. **A402** (1998) 199-204.
- 12) T. Takeuchi et al., Rev. Sci. Instr. **67** (1998) 412-417.
- 13) M. Tanaka et al., Phys. Rev. **A60** (1999) R3354-R3357.
- 14) Y. Arimoto et al., Nucl. Instr. Meth. **B173** (2001) 370-382.
- 15) K. Yonehara et al., Nucl. Instr. Meth. **B184** (2001) 391-405.
- 16) Y. Arimoto, et al., European Physical J., **D8** (2000) 305-308.
- 17) Y. Arimoto, et al., Phys. Rev. **A64** (2001) 062714 1-7
- 18) M. Tanaka et al., Nucl. Instr. Meth. **A537** (2005) 501-509.
- 19) M. Tanaka et al., Nucl. Instr. Meth. **A568** (2006) 543-547.
- 20) M. Tanaka et al., Rev. Sci. Instr. **79** (2008) 02B308 1-3.
- 21) M. Tanaka et al., Nucl. Instr. Meth. **A524** (2004) 46-59.
- 22) M. Tanaka et al., J. Phys. Conf. Ser. **295** (2011) 012167.
- 23) M. Tanaka et al., J. Phys. Elementary Particles and Atomic Nuclei, 2013, in press.
- 24) R. W. Adams et al., Science **323** (2009) 1708-1711.