



## Doctoral Thesis

### **Entwicklung von universellen AMS Anlagen bei tiefen Energien**

**Author(s):**

Müller, Arnold

**Publication Date:**

2009

**Permanent Link:**

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-005900303> →

**Rights / License:**

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

# ENTWICKLUNG VON UNIVERSELLEN AMS ANLAGEN BEI TIEFEN ENERGIEN

ABHANDLUNG  
zur Erlangung des Titels

DOKTOR DER WISSENSCHAFTEN

der

ETH Zürich

vorgelegt von

Arnold Müller  
Dipl. Phys. ETH  
geboren am 16. Februar 1980  
von Näfels (GL)

Angenommen auf Antrag von:

Prof. Dr. Martin Suter, Referent  
Prof. Dr. Johannes Friso van der Veen, Koreferent  
Dr. Hans-Arno Synal, Koreferent

2009

## Kurzfassung

Die Methode der Beschleunigermassenspektrometrie (Accelerator Mass Spectrometry; kurz *AMS*) erlaubt die Bestimmung von Radionuklid-Konzentrationen bis in den Bereich von  $10^{-16}$ . Dank verschiedenster Anwendungen in Gebieten der Umweltnaturwissenschaften, Biomedizin und Archäologie stieg in den letzten Jahrzehnten die Nachfrage an dieser Methode und damit auch das Interesse an preiswerten Analysen. AMS Anlagen mit Terminalspannungen von mehr als 5 MV sind jedoch aufgrund ihrer Dimensionen und des benötigten Personalaufwands teuer in Unterhalt und Betrieb.

Daher erfuhr die Niederenergie-AMS in den letzten 10 Jahren eine stark erhöhte Nachfrage. Durch einen kompakten Systemaufbau, geringeren Personalaufwand und hoher Effizienz wurden kostengünstigere Messungen ermöglicht. Die erste Kompaktanlage mit Terminalspannungen bis zu 600 kV (*TANDY*) wurde Mitte der 1990er Jahren an der ETH Zürich für Radiocarbonatierungen gebaut. Mit diesem System wurde gezeigt, dass mit kleinen Maschinen eine zu grossen Anlagen konkurrenzfähige Performance hinsichtlich der  $^{14}\text{C}$  Messung erreicht werden kann.

Dabei wurde die naheliegende Frage untersucht, ob neben  $^{14}\text{C}$  auch andere Radionuklide an kleinen Anlagen gemessen werden können. Die erreichten Nachweisgrenzen für die Radioisotope  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ ,  $^{129}\text{I}$  und das Aktinid Pu entsprachen nicht dem Niveau grosser Anlagen, reichten jedoch bereits für viele Anwendungen aus. Vor allem bei tiefen Energien spielt das Detektionssystem eine wichtige Rolle um isobarischen und molekularen Untergrund zu unterdrücken. Aus diesem Grund wurden im Rahmen dieser Arbeit grosse Anstrengungen unternommen, um das Auflösungsvermögen von Gasionisationsdetektoren zu verbessern.

Durch die Verwendung von gekühlten Vorverstärkern und ein optimiertes Detektordesign (niedrige Detektorkapazität, doppelte Abschirmung) konnte das elektronische Rauschen von anfänglich 32 keV auf 8.5 keV in der protonäquivalenten Eichung gesenkt werden. Dieser Fortschritt ermöglichte die Identifikation von  $^{10}\text{Be}$  und  $^{10}\text{B}$  Ereignissen im sub-MeV Bereich mit einer  $\Delta\text{E}-\text{E}_{\text{res}}$  Gasionisationskammer. Ebenfalls wurde die Energieabhängigkeit der Detektorpulshöhe im Energiebereich von 0.3 - 3 MeV Element-spezifisch (H, Be, B, Al, Cl, I und U) analysiert. Die daraus gewonnenen Daten und Erkenntnisse tragen wesentlich zum Verständnis der Detektorphysik bei. Die verschiedenen Beiträge zur Detektorauflösung und ihre Gewichtung waren von speziellem Interesse, da diese aufzeigen in welchen Belangen die Auflösung noch verbessert werden kann.

Ein spezielles Augenmerk wird in dieser Arbeit auf die Messung von  $^{10}\text{Be}$  unterhalb 1 MeV gelegt, welches neben  $^{14}\text{C}$  zu den wichtigsten Radionukliden der AMS zählt. Die Gasionisationskammer spielte dabei eine zentrale Rolle, um das Isobar  $^{10}\text{B}$  wirkungsvoll unter-

drücken zu können. Die erzielten Fortschritte im Bereich der Detektorauflösung ermöglichen eine Bor Unterdrückung bei 700 keV von mindestens 6 Größenordnungen. Falls Bor als einziger Untergrund das HE-Spektrometer neben  $^{10}\text{Be}$  passiert, sollte diese Unterdrückung prinzipiell einer  $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$  Nachweisgrenze von weniger als  $10^{-15}$  genügen. Der gemessene  $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$  Untergrund im Bereich von  $10^{-14}$  bis  $10^{-13}$  deutete jedoch darauf hin, dass neben der isobarischen Interferenz noch ein anderer Untergrund vorhanden ist. Ein grosses Problem der Niederenergie-AMS liegt darin, dass bei niedrigen Energien die Wirkungsquerschnitte für Umladeprozesse stark zunehmen. Dies führt dazu, dass neben dem Radioisotop auch andere Massen durch Streu- und Umladeprozesse das Hochenergie-Spektrometer passieren und in den Detektor gelangen können. Im Falle der  $^{10}\text{Be}$  Messung konnten  $^{9}\text{Be}$  Ionen als Ursache für den erhöhten Untergrund identifiziert werden. Diese können im Detektor nur unzureichend separiert werden.

Ein Ansatz, um gestreuten Untergrund zu unterdrücken, war die Erweiterung des HE-Spektrometers durch einen zusätzlichen Magneten. Experimente haben gezeigt, dass mit Hilfe eines zusätzlich vor dem Detektor montierten Magneten eine  $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$  Nachweisgrenze von  $< 5 \cdot 10^{-15}$  bei 525 kV Beschleunigerspannung erreicht werden kann. Da die Bor-Intensität des Strahls bei  $\text{BeO}^-$  Ionen mittels einer vor der elektrostatischen Ablenktheit montierten Abschwächerfolie reduziert wird, treten Strahlverluste unter anderem durch Energiestraggling in der Folie auf. Dank des energiefokussierenden Effekts des Zusatzmagneten konnte die Transmission in den Detektor erhöht und eine mit grossen Maschinen vergleichbare Systemtransmission erzielt werden. In Zukunft soll ein spezifisch designter Zusatzmagnet für das TANDY System als zusätzlicher Filter für alle Radionuklide eingesetzt werden. Die Nachweisgrenzen vor allem der Radionuklide  $^{129}\text{I}$  oder Pu sollen durch den Zusatzmagnet verbessert werden.

Es stellt sich in diesem Zusammenhang die Frage, ob es möglich ist, die verschiedenen Radioisotope sogar bei Beschleunigerspannungen im Bereich von 200 - 300 kV zu messen. In ersten Tests am 200 kV ETH AMS System (*MICADAS*) wurde untersucht, welche Performance an dieser Anlage für die Radioisotope  $^{10}\text{Be}$  und  $^{26}\text{Al}$  möglich ist, ohne grosse Systemanpassungen vorzunehmen. Dank der speziell für leichte Projektilen verbesserten Detektorauflösung können  $^{10}\text{Be}$  und  $^{10}\text{B}$  sogar bei Energien unterhalb 300 keV separiert werden. Die im  $\Delta E - E_{\text{res}}$  Detektor erreichte Bor-Unterdrückung mit BeF Proben reicht aus, um eine  $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$  Nachweisgrenze von  $10^{-13}$  zu erreichen. Die Messung von  $^{26}\text{Al}$  bei 200 kV Beschleunigerspannung wäre aufgrund der hohen 1+ Ladungsausbeuten eine interessante Option. Leider reicht das Ablenkvermögen des Hohenenergiespektrometers für den 1+ Zustand nicht aus. Der 2+ Ladungszustand war jedoch aufgrund der zu intensiven m/q Interferenz von  $^{13}\text{C}$  im Detektor nicht anwendbar. Die  $^{26}\text{Al}$  Ereignisse im 3+ Zustand konnten in der Gasionsationskammer problemlos identifiziert werden. Ziel dieser Tests war es, gewisse Grenzen der Methode auszuloten, um so Impulse für die Entwicklung von Systemen der nächsten Generation zu geben.

## Abstract

Accelerator mass spectrometry (*AMS*) is a highly sensitive method for measuring radionuclide concentrations up to a level of  $10^{-16}$ . The rising demand in fields such as environmental and biomedical sciences or archeology carried the interest for low priced measurements. AMS systems running at terminal voltages of 5 MV are expensive in operation and need much manpower due to high system complexity.

In this context small accelerator mass spectrometers offer an economic alternative due to a compact design, low need of manpower and high efficiency. The first 600 kV AMS system (*TANDY*) was designed and built in 1997 at ETH Zurich. The performance of the system concerning radiocarbon measurement was competitive compared to larger machines. Thereupon the question arised if besides radiocarbon other radionuclides could be measured at terminal voltages smaller than 1 MV. The detection limit obtainable with machines with more than 5 MV for radionuclides such as  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ ,  $^{129}\text{I}$  or the actinides could not be reached with the 0.6 MV *TANDY* system. But the system performance covered already the requirements for many applications.

Especially at low energies the detection system becomes very crucial for suppressing isobaric or molecular interferences. Therefore substantial efforts were made in order to improve the energy resolution of gas ionization chambers. By applying Peltier cooled preamps and an optimized detector design (small capacities, additional screening) the electronic noise level of the detection system could be reduced from 32 keV to 8 keV for protons. The electronic noise has a big impact on the total energy resolution for light projectiles at low energies. In this context the processes affecting the detector performance (charge collection, different contributions to the resolution, etc.), were investigated for different elements (H, Be, B, C, Al, Cl, I and U). The correlation between particle energy and pulse height was analyzed in detail for energies below 3 MeV. These data give useful information for the understanding of the detector physics. In particular the different contributions to the detector resolution were of interest, since these investigations point towards further potential for improvements.

A special focus was made on investigations of  $^{10}\text{Be}$  measurement below 1 MeV. Beryllium represents one of the most important radionuclides for AMS besides radiocarbon. The performance of a  $^{10}\text{Be}$  AMS measurement at low energies depends strongly on the suppression of the isobaric interference  $^{10}\text{B}$  in a  $\Delta\text{E-E}_{\text{res}}$  gas ionization chamber. The total energy resolution for beryllium ions below 1 MeV could be reduced dramatically and a  $^{10}\text{B}$  suppression of 6 orders of magnitude was obtained at beam energies of about 700 keV. The achievable suppression of isobaric boron should enable a  $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$  detection limit of  $10^{-15}$ . But other background contributions limited the  $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$  detection limit to a level

of  $10^{-14}$  -  $10^{-13}$ . Since stripper densities in low energy AMS are quite high, it is difficult to obtain good vacuum conditions in the acceleration tubes. Therefore the probability of scattering and charge exchange processes in the acceleration tubes increases. It is therefore possible that particles with different masses pass the high energy spectrometer and get into the detector by such a process.

The additional background for the  $^{10}\text{Be}$  measurement was identified as  $^9\text{Be}$  ions reaching the detector by scattering and charge exchange processes. Experiments with an additional magnet installed in front of the detector have shown, that the  $^9\text{Be}$  background can be removed effectively and a  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  detection limit of less than  $5 \cdot 10^{-15}$  is achievable.

Using  $\text{BeO}^-$  source currents implies high intensities of  $^{10}\text{B}$  on the high energy side of the spectrometer because of the stability of the molecule  $\text{BO}^-$ . In order to reduce the  $^{10}\text{B}$  intensity before reaching the gas ionization detector a degrader foil made of silicon nitride is mounted in front of the electrostatic analyzer. This causes losses in efficiency by energy and angular straggling or charge exchange processes. By applying an additional magnet the loss due to the energy straggling in the degrader foil can be compensated at least particularly because of the energy focusing effect of a magnetic sector field. A newly designed magnet, which was optimized for highest possible  $^{10}\text{Be}$  efficiency, was installed recently. In addition this filter should improve the detection limit of  $^{129}\text{I}$  and actinide measurements. It is an interesting question to investigate, if even systems operating at terminal voltages of 200 - 300 kV are applicable for measuring various radionuclides. First tests at the 200 kV MICADAS spectrometer were performed with the radionuclides  $^{10}\text{Be}$  and  $^{26}\text{Al}$ . Because of the excellent energy resolution of the gas ionization chamber the isobars  $^{10}\text{Be}$  and  $^{10}\text{B}$  could be identified even at energies of less than 300 keV. A suppression of about  $1 \cdot 10^{-13}$  was achieved with  $\text{BeF}$  samples. Measuring  $^{26}\text{Al}$  at 200 kV terminal voltages would be an interesting option due to the high stripping efficiency for the charge state 1+. The achievable field strength of the high energy magnet and electrostatic deflector is unfortunately insufficient for bending  $^{26}\text{Al}^{1+}$ . Because of a very high intensity of the m/q interference of  $^{13}\text{C}$  the 2+ charge state was not applicable, too. Therefore first experiments with  $^{26}\text{Al}$  were made in the charge state 3+, where  $^{26}\text{Al}$  events were efficiently identified in the  $\Delta E - E_{res}$  gas ionization chamber. These measurements were performed in order to analyze the limits of the method and to give some ideas for prospective investigations.