

## Abstract

Accelerator mass spectrometry (AMS) is an extremely sensitive method for determining isotopic ratios. With CologneAMS a completely new AMS setup (including sample preparation laboratories, which are located in the Institute of Geology and Mineralogy) has been established. The 6 MV accelerator setup was designed by High Voltage Engineering Europe (HVEE) and installed in the Institute of Nuclear Physics at the University of Cologne in 2010. The facility has been funded by the German Research Foundation (DFG) to satisfy the increasing demand for AMS measurements within the German research landscape and to develop new techniques.

Within the scope of this work it was possible to successfully add plutonium ( $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$  and  $^{244}\text{Pu}$ ) to the range of routinely measurable elements. This includes the development of a measurement method and the writing of a software for a semi automatic data analysis. No acceptance tests were provided for plutonium by HVEE and the special circumstances - plutonium has only rare, radioactive isotope - demand the application of techniques and procedures that have not been used for any other isotope at CologneAMS so far. For the first time the 3+ charge state is being used with a machine of this size and this results in an excellent transmission. First test measurements of calcium isotopes have been made, too, which show that the setup is well suited for this task and the measurement of  $^{41}\text{Ca}/^{40}\text{Ca}$  ratios below  $10^{-15}$  should be possible.

CologneAMS also aims at determining the ratios of  $^{53}\text{Mn}$  and  $^{60}\text{Fe}$  and their stable isotopes, whose measurement is quite challenging due to strong isobaric interferences. High ion energies are a proved way to reach a good isobar separation capability. That's why a complete, newly dedicated beam line for AMS measurements has been established at the 10 MV FN-tandem accelerator. In this work the software suite which is needed for full computer operation has been coded. This involves the control of all power supplies (while providing tools for tuning and beam diagnostics), Faraday cup control and current readouts as well as real time critical bouncer control including gated fast pulsed beam current analysis and data acquisition linkage. Target sample management and fully automated AMS measurement sequences are additionally provided.

The isotope specific energy loss in silicon nitride foils is a common method for the suppression of isobaric interferences. In order to allow a better planning of future setups, that aim at the optimization of isobar separation, the properties (energy loss, energy loss straggling and angular straggling) of various ions in these foils have been measured using the position-sensitive time of flight spectrometer Cerberus. The results have been compared with the predictions of different theoretical models.

A gas-filled magnet is another established method for isobar separation in accelerator mass spectrometry. Its advantages are a high transmission of the wanted isotope and a good spatial separation of the isobar. The  $120^\circ$  magnet at the 6 MV accelerator of CologneAMS has been modified

and can now also be operated in this mode. In first experiments the beam widths - which are needed for a final detector design - of various isotopes have been measured. Their transmission and therefore the gains in comparison with the foil absorption technique have also been determined. A very simple Monte Carlo simulation has been implemented, which reproduces experimental results qualitatively.

# Kurzzusammenfassung

Die Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) ist eine äußerst empfindliche Methode zur Bestimmung von Isotopenverhältnissen. Mit CologneAMS wurde ein vollständig neuer AMS Aufbau (inklusive Probenaufbereitungslaboren, welche im Institut für Geologie und Mineralogie errichtet wurden) errichtet. Die 6 MV Beschleunigeranlage wurde von High Voltage Engineering Europe (HVEE) entworfen und 2010 im Institut für Kernphysik der Universität zu Köln installiert. Die Einrichtung wurde von der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) finanziert mit dem Ziel, die wachsende Nachfrage nach AMS Messungen in der deutschen Forschungslandschaft zu befriedigen und neue Techniken zu entwickeln.

Im Rahmen dieser Arbeit gelang es erfolgreich, Plutonium ( $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$  und  $^{244}\text{Pu}$ ) zum Spektrum der routinemäßig messbaren Elemente hinzuzufügen. Dies beinhaltet die Entwicklung einer Messmethode und das Schreiben einer Software zur semiautomatischen Datenanalyse. Für Plutonium wurden keinerlei Abnahmetests seitens HVEE vorgelegt und die besonderen Umstände bei Plutonium - welches nur radioaktive, seltene Isotope besitzt - erfordern die Verwendung von Techniken und Messmethoden, wie sie bei CologneAMS bisher für kein anderes Isotop eingesetzt wurden. Erstmals wird an einer Maschine dieser Größe der 3+ Ladungszustand genutzt, was in einer ausgezeichneten Transmission resultiert. Erste Testmessungen von Calciumisotopen wurden durchgeführt, die zeigen, dass der Messaufbau für diese Aufgabe gut geeignet ist und das Messen von  $^{41}\text{Ca}/^{40}\text{Ca}$  Verhältnissen unter  $10^{-15}$  im Bereich des Möglichen liegen sollte.

Es ist das Ziel von CologneAMS, auch die Verhältnisse von  $^{53}\text{Mn}$  und  $^{60}\text{Fe}$  zu ihren stabilen Isotopen zu bestimmen, die auf Grund starker Isobareninterferenzen schwierig zu messen sind. Hohe Ionenenergien sind ein probates Mittel, um eine gute Isobarenseparationsfähigkeit zu erreichen. Daher wurde am 10 MV FN-Tandem Beschleuniger eine neue dedizierte Strahllinie für AMS Messungen aufgebaut. In dieser Arbeit wurde das Software-Paket, das für eine vollständige Computersteuerung benötigt wird, geschrieben. Dies beinhaltet die Regelung aller Netzgeräte (unter Bereitstellung von Hilfsmitteln zum Einstellen und zur Diagnose des Ionenstrahls), Faraday-Cup Steuerung und Auslese sowie die echtzeitkritische Bouncer Steuerung inklusive gegateter Analyse von schnell gepulsten Strahlströmen und Anbindung an die Datenaufnahme. Darüber hinaus werden die Probenverwaltung und vollautomatische Sequenzen für AMS Messungen zur Verfügung gestellt.

Der isotopenspezifische Energieverlust in Siliziumnitridfolien ist eine häufig eingesetzte Methode zur Trennung von isobarischen Interferenzen. Um eine bessere Planung von zukünftigen Aufbauten zur Optimierung der Isobarenseparation zu ermöglichen, wurden die Eigenschaften (Energieverlust, Energieverluststraggling und Winkelstraggling) von verschiedenen schweren Ionen in

diesen Folien mit dem ortssensitiven Flugzeitspektrometer Cerberus vermessen. Die Ergebnisse wurden mit den Vorhersagen verschiedener theoretischer Modelle verglichen.

Auch ein gasgefüllter Magnet ist in der Beschleunigermassenspektrometrie eine gängige Methode zur Isobarensparation. Die Vorteile sind eine hohe Transmission des gewünschten Isotops und eine gute räumliche Trennung des Isobars. Der  $120^\circ$  Magnet am 6 MV Beschleuniger von CologneAMS wurde modifiziert und kann nun auch in diesem Modus betrieben werden. In ersten Experimenten konnten die Strahlbreiten verschiedener Isotope, die für ein finales Detektordesign benötigt werden, gemessen werden. Auch konnten Transmissionen und damit der Gewinn im Vergleich zur Folienabsorptionsmethode ermittelt werden. Eine sehr simple Monte-Carlo-Simulation wurde implementiert, die experimentelle Ergebnisse qualitativ wiedergibt.