# Ein dediziertes Beschleuniger-Massenspektrometer für mittelschwere Radionuklide am Kölner FN-Tandembeschleuniger

#### Inaugural-Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität zu Köln

vorgelegt von

Markus Hermann Schiffer

aus Köln-Porz

Köln, 2018

Berichterstatter:

Prof. Dr. Alfred Dewald

Prof. Dr. Jan Jolie

Prof. Dr. Hans-Arno Synal

Tag der mündlichen Prüfung: 11. Januar 2018

Für Katrin und Jonas

Wie schwer sind nicht die Mittel zu erwerben, Durch die man zu den Quellen steigt! Und eh' man nur den halben Weg erreicht, Muß wohl ein armer Teufel sterben. Johann Wolfgang von Goethe: Faust I

## Inhaltsverzeichnis

Ał	Abstract									
Κι	ırzzus	samme	nfassung	iii						
Ei	nleitu	ing		1						
1.	Gru	ndlager	1	5						
	1.1.	Radio	nuklide	5						
	1.2.	Wechs	selwirkung von Ionen mit Materie	8						
		1.2.1.	Ladungszustände	8						
		1.2.2.	Energieverlust	10						
		1.2.3.	Energiestraggling	10						
		1.2.4.	Winkelstraggling	11						
	1.3.	Isobar	entrennungsvermögen und -faktor	12						
	1.4.	Sensit	ivität, Effizienz und Detektionslimit	13						
		1.4.1.	Variationskoeffizient	16						
	1.5.	Isobar	entrennung	17						
		1.5.1.	Degrader-Folie und elektrostatischer Analysierer	20						
		1.5.2.	Degrader-Folie und Time-of-Flight-System	24						
		1.5.3.	Gasgefüllter Magnet	27						
		1.5.4.	Gasionisationsdetektor	28						
		1.5.5.	Interferenzen	31						
		1.5.6.	Projektil X-Ray AMS	34						
	1.6.	Ionen	optik	35						
		1.6.1.	Hochenergie-Massenspektrometer	37						
		1.6.2.	Projektanalyse Big-Karl	46						
2.	Exp	eriment	teller Aufbau	49						
	• 2.1.	. Injektor und Niederenergieseite								
	2.2.	, FN-Ta	Indembeschleuniger	52						
	2.3.	Hoche	energie-Massenspektrometer	53						
		2.3.1.	90°-Analysiermagnet II	54						
		2.3.2.	Quadrupol-Triplett	57						
		2.3.3.	Elektrostatischer Analysierer	58						
		2.3.4.	Time-of-Flight-System	62						

	2.3.5. Gasgefüllter Magnet	63						
2.4. Detektorsysteme								
	2.4.1. Time-of-Flight-Detektor	64						
	2.4.2. 2-Anoden-Gasionisationsdetektor	66						
	2.4.3. Bragg-Detektor	67						
3. Test	tmessungen mit stabilen Isotopen	69						
3.1.	Injektor	69						
3.2.	Magnetische Steifigkeit-Interferenzen	72						
3.3.	Ionenstrahlprofilmessung	74						
3.4.	Radiusmessung 90°-Analysiermagnet II	75						
3.5.	Isobarentrennung mit Degrader-Folie und ESA	75						
3.6.	Isobarentrennung mit Degrader-Folie und ToF-System	79						
3.7.	Isobarentrennung mit Gasionisationsdetektor	80						
	3.7.1. 2-Anoden-Gasionisationsdetektor	80						
	3.7.2. Bragg-Detektor	85						
3.8.	Projektil X-Ray AMS	87						
3.9.	Transmissionstest mit <sup>54</sup> Fe	90						
4. AM	S-Messungen von mittelschweren Radionukliden	93						
4.1.	<sup>41</sup> Ca-Messungen	93						
	4.1.1. Ladungszustände	93						
	4.1.2. <sup>41</sup> Ca-Tuning $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$	94						
	4.1.3. $({}^{41}\text{Ca}/{}^{40}\text{Ca})$ -Messung im 7 <sup>+</sup> bei $U_T$ =8,500 MV	96						
4.2.	<sup>53</sup> Mn-Messungen	98						
	4.2.1. Ladungszustände	99						
	4.2.2. Isobarentrennung mit Degrader-Folie und ESA	99						
	4.2.3. $^{53}$ Mn-Tuning	100						
	4.2.4. $({}^{53}Mn/{}^{55}Mn)$ -Messung im 10 <sup>+</sup> bei $U_T$ =9,280 MV	102						
Zusam	menfassung und Ausblick	107						
A. Deg	grader-Folie und elektrostatischer Analysierer	109						
B. Ione	enoptik	113						
C. Pro	jektil X-Ray AMS	117						
D. ( <sup>41</sup> 0	D. ( $^{41}$ Ca/ $^{40}$ Ca)-Messung im 6 <sup>+</sup> bei $U_T$ =8,500 MV 1							
E. 135	o°-Magnet	121						
Abbildı	ungsverzeichnis	123						

Tabellenverzeichnis	125
Literaturverzeichnis	127
Danksagung	145
Erklärung zur Urheberschaft	147
Lebenslauf	149

### Abstract

In this dissertation an accelerator mass spectrometer for medium mass radionuclides was successfully designed for the Cologne FN accelerator. With this AMS-system ( $^{53}$ Mn/ $^{55}$ Mn) isotopic ratios are measurable at a 10 MV tandem accelerator in the range of  $10^{-9}$  to  $10^{-12}$  for the first time, with a detection limit of  $C_L$ =7.2×10<sup>-13</sup>.

The setup is dedicated for medium mass radionuclide measurements. It consists of an achromatic injector with a fast injection system and a high energy mass spectrometer with a 90° analyzing magnet ( $\rho$ =1.1 m) followed by a multi Faraday offset cup chamber. The isobar separation will be done with an isotope specific multi step energy loss measurement with combinations of silicon-nitride foils, a 30° electrostatic analyzer ( $\rho$ =3.5 m), a 4 m time-of-flight system and a gas ionization detector. Additionally a 135° magnet ( $\rho$ =0.9 m) was installed to gain higher transmissions for measurements like <sup>60</sup>Fe.

For every measurement of isotopic ratios the sensitivity and the detection limit is crucial. The error normalized sensitivity defined in this thesis allows a comparison of the ( $^{53}$ Mn/ $^{55}$ Mn) isotopic ratio measurement with established laboratories. The measured detection limit is comparable to other research centers with tandem accelerators with higher terminal voltage despite of the achievable ion energy at the Cologne 10 MV FN accelerator.

The whole system was tested with measurements of stable ion beams and isotopic ratios. During the test measurements of ( ${}^{41}Ca/{}^{40}Ca$ ) isotopic ratios without passive absorbers a detection limit of  $C_L < 5.32 \times 10^{-13}$  was reached. A high  ${}^{53}Cr$ suppression in the ( ${}^{53}Mn/{}^{55}Mn$ ) isotopic ratio measurement with the electrostatic analyzer was reached by using the optimal silicon-nitride degrader foil thickness. The foil thickness was calculated by the contribution of the neighboring charge states of the interfering isobar  ${}^{53}Cr$ . An additional suppression was achieved with slits in the dispersive plane in front of the electrostatic analyzer. The isobar suppression with degrader foils and the time-of-flight system is high, if the nuclear charge of the isobar is higher than the nuclear charge of the radionuclide. The isobar suppression of the gas ionization detector was tested with different combinations of the multi step energy loss measurement. It was possible to increase the sensitivity of the  ${}^{53}Mn$  measurement by the use of the gas ionization detector directly behind the electrostatic analyzer. Additionally the isobar suppression power of  ${}^{53}\text{Cr}/{}^{53}\text{Mn}$  and  ${}^{60}\text{Ni}/{}^{60}\text{Fe}$  by characteristic projectile x-ray measurement was determined. The calibration of the setup was possible by the intrinsic determination of the gold target energies,  $M_{\alpha}$ ,  $L_{\alpha}$  and  $L_{\beta}$ .

### Kurzzusammenfassung

In dieser Arbeit wurde erfolgreich ein Beschleuniger-Massenspektrometer für mittelschwere Radionuklide am Kölner FN-Tandembeschleuniger berechnet, aufgebaut und getestet. Mit diesem AMS-System konnten ( $^{53}$ Mn/ $^{55}$ Mn)-Isotopenverhältnisse im Bereich von 10<sup>-9</sup> bis 10<sup>-10</sup> mit einem Detektionslimit von  $C_L$ =7,2×10<sup>-13</sup> erstmalig an einem 10 MV Tandembeschleuniger gemessen werden.

Das aufgebaute AMS-System ist dediziert für den Nachweis von mittelschweren Radionukliden. Es verfügt über einen achromatischen Injektor mit Fast-Injection-System sowie ein Hochenergie-Massenspektrometer mit einem 90°-Analysiermagneten ( $\rho$ =1,1 m), hinter dem die Ionenströme der stabilen Nuklide in Offset-Faraday-Cups gemessen werden. Die Isobarenunterdrückung kann über eine mehrstufige isotopenspezifische Energieverlust-Messung mit Kombinationen aus Siliziumnitrid-Folien, einem 30° elektrostatischen Analysierer ( $\rho$ =3,5 m), einem 4 m Timeof-Flight-System sowie einem Gasionisationsdetektor erfolgen. Zusätzlich wurde das AMS-System für die Erhöhung der Transmission bei Radionuklidmessungen wie <sup>60</sup>Fe um einen 135°-Magneten ( $\rho$ =0,9 m) für den gasgefüllten Modus erweitert.

Entscheidend sind bei allen AMS-Messungen die erreichbare Sensitivität und das Detektionslimit. Die hier gegebene Definition der fehlernormalisierten Sensitivität ermöglicht den Vergleich der Ergebnisse der (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Isotopenverhältnismessungen mit den Werten etablierter Labore. Das erreichte Detektionslimit ist trotz der niedrigen Ionenenergien mit anderen Forschungseinrichtungen vergleichbar, die über Tandembeschleuniger mit höherer Terminalspannung verfügen.

Das gesamte AMS-System wurde mit Messungen von stabilen Isotopen und Isotopenverhältnissen überprüft. Bei den Testmessungen zu ( $^{41}Ca/^{40}Ca$ )-Isotopenverhältnissen wurde ohne passive Absorber ein Detektionslimit von  $C_L < 5,32 \times 10^{-13}$ erreicht. Bei den ( $^{53}Mn/^{55}Mn$ )–Isotopenverhältnismessungen wurde der hohe  $^{53}Cr$ Isobarentrennungsfaktor mit Siliziumnitrid-Folien und elektrostatischem Analysierer durch die Verwendung der optimalen Siliziumnitrid-Foliendicke erreicht. Die Foliendicke wurde unter Berücksichtigung der Beiträge der  $^{53}Cr$  Nachbarladungszustände berechnet. Eine weitere Unterdrückung des Isobars ohne starke Reduktion des Radionuklids konnte mit Schlitzen in der dispersiven Ebene vor dem elektrostatischen Analysierer erreicht werden. Die erreichte Isobarenunterdrückung mit Siliziumnitrid-Folien und dem 4 m Time-of-Flight-System ist nur hoch, wenn die Kernladungszahl des Isobars höher als die des Radionuklids ist. Die Isobarentrennung in einem 2-Anoden-Gasionisationsdetektor wurde mit den verschiedenen Kombinationen der mehrstufigen Energieverlustmessungen bestimmt. Durch die Verwendung des Gasionisationsdetektors direkt hinter dem elektrostatischen Analysierer konnte die Sensitivität der <sup>53</sup>Mn-Messung gesteigert werden.

Des Weiteren wurde das Isobarentrennungsvermögen von  ${}^{53}$ Cr/ ${}^{53}$ Mn und  ${}^{60}$ Ni/ ${}^{60}$ Fe über die Messung der charakteristischen Projektil-Röntgenenergien bestimmt. Dabei zeichnete sich der Messaufbau durch die intrinsische Kalibration des Energiespektrums über die  $M_{\alpha}$ ,  $L_{\alpha}$  und  $L_{\beta}$  Linien des Goldtargets aus.

### Einleitung

Die Beschleuniger-Massenspektrometrie (AMS, englische Abkürzung für Accelerator-Mass-Spectrometry) ist eine hoch sensitive Messmethode, bei der einzelne Radionuklid-Atome detektiert werden, um geringste Isotopenverhältnisse in der Größenordnung von 10<sup>-12</sup> bis 10<sup>-16</sup> in kleinsten Probenmengen mit hoher Effizienz zu messen. Eine Vielzahl von langlebigen Radionukliden mit Halbwertszeiten von 270 d bis  $1.4 \times 10^{10}$  a sind von großer Bedeutung für ein weitverzweigtes Feld von Wissenschaften wie Archäologie, Geologie, Nukleare-Astrophysik, Medizin, Biomedizin, Dendrochronologie, Materialwissenschaften, Ozeanographie, Hydrologie und Paläoklimatologie [1, 2]. Die Isotopenverhältnisse, die mit AMS gemessen wurden, sind über alle Massenzahlen verteilt von <sup>3</sup>H, <sup>10</sup>Be, <sup>14</sup>C, <sup>26</sup>Al, <sup>32</sup>Si, <sup>36</sup>Cl, <sup>39</sup>Ar, <sup>40</sup>K, <sup>41</sup>Ca, <sup>44</sup>Ti, <sup>53</sup>Mn, <sup>55,60</sup>Fe, <sup>59,63</sup>Ni, <sup>68</sup>Ge, <sup>79</sup>Se, <sup>81</sup>Kr, <sup>90</sup>Sr, <sup>93</sup>Zr, <sup>99</sup>Tc, <sup>126</sup>Sn, <sup>129</sup>I, <sup>135,137</sup>Cs, <sup>146,151</sup>Sm, <sup>182</sup>Hf, <sup>202,205</sup>Pb, <sup>210m</sup>Bi, <sup>228,229,230,232</sup>Th, <sup>231</sup>Pa, <sup>232,233,234,235,236,238</sup>U, <sup>237</sup>Np, <sup>239,240,242,244</sup>Pu, <sup>241,243</sup>Am bis <sup>244,246,247,248,250</sup>Cm [3]. Die Technik der Beschleuniger-Massenspektrometrie profitierte von Beginn an stark von den Entwicklungen der Kernphysik, da etablierte Systeme wie Beschleuniger, Massenspektrometer, Detektoren [4, 5] und die signalverarbeitende Elektronik verwendet werden konnten.

Bei der Beschleuniger-Massenspektrometrie werden in wenigen Stunden Milligramm des Probenmaterials in einer Ionenquelle ionisiert und mit einem Beschleuniger auf hohe Energie gebracht. Es werden fast ausschließlich Cs-Sputterionenquellen verwendet, die negative Ionen produzieren. Zur Beschleunigung der negativen Ionen haben sich Tandembeschleuniger bewährt, da beim Durchgang der Ionen durch das Stripper-Material Molekülbindungen zerstört werden [6]. Durch hohe Ladungszustände der Projektile können hohe kinetische Energien erreicht werden, die im Bereich von mehreren MeV/u liegen. Nach dem Tandembeschleuniger werden die Ionen in einem Massenspektrometer über die Coulomb-Wechselwirkung nach der ionischen Ladung gefiltert. Die Trennung kann nach (E/q) mit elektrischen Feldern und nach  $(E/q) \times (M/q)$  mit magnetischen Feldern erfolgen. Die Geschwindigkeitsselektion nach (E/q)/(M/q) kann mit einer Kombination aus elektrischen und magnetischen Feldern erfolgen. Jeder Filter ermöglicht die Reduzierung des nicht-isobarischen Untergrunds in der Größenordnung von  $10^5$  [4]. Die Isobare werden anschließend über den differentiellen Energieverlust (dE/dx) in einem Medium getrennt, welcher von der Kernladungszahl abhängt.

Zusammengefasst resultiert die hohe Sensitivität aus der Trennung nach der io-

nischen Ladung mit anschließender Trennung über die Kernladung [7]. Die Sensitivität ist begrenzt durch Untergrund, der durch die Isobare, die Gas- und Schlitz-Streuung, den Molekülaufbruch und durch Ladungszuständsänderung am Restgas entsteht [3]. Um die Sensitivität zu steigern, werden hoch reine Ionenquellen verwendet [4], und es wird eine sorgfältige Auswahl der produzierten Ionen und Molekülionen in der Ionenquelle getroffen, um schon dort die Isobare zu unterdrücken. Ebenso werden hochreine Materialien zur Probenherstellung verwendet. Steht bei der Messung genügend Energie zur Verfügung, können mehrstufige Energieverlustmessungen durchgeführt werden, wodurch gestreute Ereignisse frühzeitig selektiert werden können [8]. Um Transmissionsverluste und Isotopenfraktionierung zu korrigieren, werden Standard-Proben mit bekannten Isotopenverhältnissen gemessen, auf die die Proben normalisiert werden. Instabilitäten der magnetischen und elektrostatischen Felder werden durch die schnelle sequentielle Messung von Radionuklid und stabilem Isotop ausgeglichen.

CologneAMS, das Zentrum für Beschleuniger-Massenspektrometrie der Universität zu Köln, verfügt seit 2010 über ein 6 MV Tandetron<sup>TM</sup> AMS-System von HVEE, an dem die Radionuklide <sup>10</sup>Be, <sup>14</sup>C, <sup>26</sup>Al, <sup>36</sup>Cl, <sup>41</sup>Ca, <sup>129</sup>I und <sup>239,240,242,244</sup>Pu gemessen werden [9, 10, 11, 12]. Auf Grund der hohen Nachfrage nach Messungen von mittelschweren Radionukliden wie <sup>53</sup>Mn für geologische Anwendungen wurde entschieden, dass am 10 MV FN-Tandembeschleuniger des Instituts für Kernphysik der Universität zu Köln ein dediziertes Beschleuniger-Massenspektrometer aufgebaut wird, um das Angebot an messbaren Isotopenverhältnissen zu erweitern. Mit der höheren Energie können Isobare getrennt werden, die eine geringe relative Kernladungszahldifferenz haben, oder bei denen das stabile Isotop eine sehr hohe relative Häufigkeit aufweist. Das Ziel des Projekts ist die Messung von (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Verhältnissen im Bereich von 10<sup>-13</sup> mit einer Genauigkeit von 50%.

Der FN-Tandembeschleuniger der Universität zu Köln wird hauptsächlich zu Messungen zur Kernstrukturanalyse von Kernen hoher Baryonenzahl mit Anregungsenergien von einigen MeV verwendet, für die feste Messaufbauten vorhanden sind, siehe Abb. 1: Horus-Spektrometer, Orangen-Spektrometer, Plunger, Praktikums-Streukammer und ein Aktivierungs-Aufbau. Weitere Messplätze für wechselnde Aufbauten sind vorhanden. Zum Betrieb der Messaufbauten ist ein 90°-Analysiermagnet und ein Schaltmagnet vorhanden. Auf der Niederenergieseite wird ein Ionenquellenbereich mit einer Middleton-Ionenquelle und einem Duoplasmatron in Kombination mit einem 20°-Magneten betrieben. Zu Beginn dieser Arbeit war der Injektor für AMS-Messungen (rot) noch nicht betriebsbereit. Die ionenoptischen Elemente befanden sich in Position, die Versorgungs- und Steuereinrichtungen waren fertiggestellt. Das gesamte Hochenergie-Massenspektrometer (rot) wurde im Rahmen dieser Arbeit berechnet, aufgebaut und getestet.



### Kapitel 1.

### Grundlagen

#### 1.1. Radionuklide

Bei der großen Anzahl von verschiedenen Radionukliden, die mit AMS gemessen wurden, gibt es kaum Messungen von Isotopenverhältnissen, die gleiche Herausforderungen an die Probenaufbereitung und das Beschleuniger-Massenspektrometer stellen. Keine Messung eines bestimmten Isotopenverhältnisses kann ohne eine Beurteilung der relativen Kernladungszahldifferenz und der relativen Häufigkeitsverteilung des stabilen Isobars geschehen. Im Folgenden werden die Besonderheiten und Schwierigkeiten der Messungen der Radionuklide <sup>32</sup>Si, <sup>41</sup>Ca, <sup>53</sup>Mn und <sup>60</sup>Fe näher erläutert, da die Messungen der entsprechenden Isotopenverhältnisse auf Grund der hohen Nachfrage bei CologneAMS von besonderem Interesse sind.

#### (<sup>32</sup>Si/Si)

Das Radionuklid <sup>32</sup>Si hat eine Halbwertszeit von  $T_{1/2}$ =153 a [13]. Es entsteht bei Spallationsreaktionen von Argon in der Atmosphäre durch die kosmische Strahlung, <sup>40</sup>Ar(n,x)<sup>32</sup>Si [14]. Durch Regen und Schnee wird es kontinuierlich ausgewaschen und kann zur Datierung von ozeanischen Zirkulationen, jungem Grundwasser oder Polareis verwendet werden. Mit der Messung des Isotopenverhältnis ist ein Datierungszeitraum von 30 bis 1000 Jahren möglich [15].

Die Unterdrückung des Isobars <sup>32</sup>S ist durch die relative Häufigkeitsverteilung der stabilen Schwefel-Isotope mit einem <sup>32</sup>S Anteil von 95,02% stark erschwert. Die Unterdrückung über die relative Kernladungszahldifferenz  $\Delta Z/Z_R$ =14,3% ist hingegen vorteilhaft. Für ein Detektionslimit von 10<sup>-15</sup> wird eine Unterdrückung von 10<sup>16</sup> benötigt [15]. Zur Unterdrückung von <sup>32</sup>S wird meist die Injektion als Hydrit <sup>32</sup>SiH<sup>-</sup> gewählt [16].

#### (<sup>41</sup>Ca/Ca)

Das Radionuklid <sup>41</sup>Ca hat eine Halbwertszeit von  $T_{1/2}=104\pm5$  ka [17]. Es entsteht in terrestrischem Material durch Neutroneneinfang an <sup>40</sup>Ca und Spallation von Fe und Ti [18]. Es kann zu paleoklimatischen Studien in Eisbohrkernen verwendet

Ca 34 <sup>35 ns</sup>	Ca 35 25.7 ms	Ca 36 102 ms	Ca 37 181.1 ms	Ca 38 440 ms	Ca 39 859.6 ms	Ca 40 96.94 3.0·10 <sup>21</sup> a	Ca 41 9.94-10 <sup>4</sup> a	Ca 42 0.647
K 33 25 ns	K 34 25 ns	K 35 178 ms	K 36 342 ms	K 37 1.226 s	K 38 7.636 m 924.3 ms	K 39 93.2581	K 40 0.0117 1.248·10 <sup>9</sup> a	K 41 6.7302
Ar 32	Ar 33	Ar 34	Ar 35	Ar 36	Ar 37	Ar 38	Ar 39	Ar 40
98.0 ms	173.0 ms	844.5 ms	1.7756 s	0.3336	35.04 d	0.0629	269 a	99.6035
CI 31	CI 32	CI 33	CI 34	CI 35	Cl 36	CI 37	CI 38	CI 39
190 ms	298 ms	2.511 s	1.5264 s 32.00 m	75.76	3.01-10 <sup>5</sup> a	24.24	37.24 m 715 ms	56.2 m
S 30	S 31	S 32	S 33	S 34	S 35	S 36	S 37	S 38
1.178 s	2.5534 s	94.99	0.75	4.25	87.37 d	0.01	5.05 m	170.3 m
P 29	P 30	P 31	P 32	P 33	P 34	P 35	P 36	P 37
4.142 s	2.498 m	100	14.268 d	25.35 d	12.43 s	47.3 s	5.6 s	2.31 s
Si 28	Si 29	Si 30	Si 31	Si 32	Si 33	Si 34	Si 35	Si 36
92.223	4.685	3.092	157.36 m	153 a	6.11 s	2.77 s	780 ms	450 ms

Abbildung 2.: Nuklidkarte zur Übersicht für (<sup>32</sup>Si/Si)- und (<sup>41</sup>Ca/Ca)-Messung.<sup>1</sup>

werden [3]. Als kosmogenes Nuklid kommt es in Meteoriten vor. Für die nukleare Astrophysik können die Wirkungsquerschnitte von Reaktionen wie  ${}^{40}Ca(n,\gamma){}^{41}Ca$  mit AMS gemessen werden. Als *in-vivo* Tracer kann  ${}^{41}Ca$  in Pflanzen, Tieren und Menschen z.B. zu Osteoporose-Studien verwendet werden [3].

Die Unterdrückung des stabilen Isobars <sup>41</sup>K kann durch die Injektion des Moleküls <sup>41</sup>CaF<sub>3</sub><sup>-</sup> erfolgen, da das Molekül KF<sub>3</sub><sup>-</sup> instabil ist. Die Trennung des <sup>41</sup>K Untergrunds, der durch molekularen Untergrund mit gleicher Gesamtmasse entsteht, wie <sup>41</sup>K<sup>57</sup>Fe, ist über die relative Kernladungszahldifferenz  $\Delta Z/Z_R$ =5% ohne passive <sup>41</sup>K Unterdrückung möglich. Die relative Häufigkeitsverteilung der stabilen Kalium-Isotope mit einem <sup>41</sup>K Anteil von 6,73% ist deshalb unproblematisch. Höhere negative Ionenströme können durch die Injektion von <sup>41</sup>CaH<sup>-</sup> erreicht werden. Der höhere <sup>41</sup>K Untergrund kann durch die Messung bei hohen Ionenenergien getrennt werden. Problematisch ist dabei die aufwändigere Aufbereitung des Probenmaterials.

#### $(^{53}Mn)^{55}Mn)$

Das Radionuklid <sup>53</sup>Mn hat eine Halbwertszeit von  $T_{1/2}$ =3,74 Ma [19]. Es wird in Materie durch verschiedene Spallationsreaktionen an Fe, Mn, Co und Ni produziert [18], wie <sup>nat</sup>Fe(p,x)<sup>53</sup>Mn und <sup>nat</sup>Fe(n,x)<sup>53</sup>Mn. Die höchsten Wirkungsquerschnitte von bis zu 200 mb werden den Reaktionen <sup>56</sup>Fe(p, $\alpha$ )<sup>53</sup>Mn und <sup>56</sup>Fe(p,2p2n)<sup>53</sup>Mn zugeordnet. Das Isotopenverhältnis kann zur Bestimmung des Eintrags von extraterrestrischer Materie in die Erdatmosphäre durch die Messung von hydrogenetischen Tiefseemangankrusten verwendet werden [20]. Die *in-situ* Produktion erfolgt bei großen Höhen durch die Neutronen-Spallationsreaktionen <sup>nat</sup>Fe(n,x)<sup>53</sup>Mn. Ab

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Erstellt mit Nuclids2tex, Lebensdauern und Zerfallsarten nach National Nuclear Data Center, http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/indx\_sigma.jsp, Abgerufen am 26.07.17

Ni 54 114.2 ms	Ni 55 204.7 ms	Ni 56 6.075 d	Ni 57 35.60 h	Ni 58 68.077	Ni 59 7.6·10 <sup>4</sup> a	Ni 60 26.223	Ni 61 1.1399	Ni 62 3.6346
Co 53 240 ms 247 ms	Co 54	Co 55 17.53 h	Co 56 77.236 d	Co 57 271.74 d	Co 58 70.86 d	Co 59	Co 60 1925.28 d 10.467 m	Co 61 1.649 h
Fe 52 8.725 h 45.9 s	Fe 53 8.51 m 2.54 m	Fe 54 5.845	Fe 55 2.744 a	Fe 56 91.754	Fe 57 2.119	Fe 58 0.282	Fe 59 44.495 d	Fe 60 2.62·10 <sup>6</sup> a
Mn 51 46.2 m	Mn 52	Mn 53 3.74·10 <sup>6</sup> a	Mn 54 312.20 d	Mn 55	Mn 56 2.5789 h	Mn 57 85.4 s	Mn 58 3.0 s 65.4 s	Mn 59 4.59 s
Cr 50 4.345 1.3-10 <sup>18</sup> a	Cr 51 27.7025 d	Cr 52 83.789	Cr 53 9.501	Cr 54 2.365	Cr 55 3.497 m	Cr 56 5.94 m	Cr 57 21.1 s	Cr 58 7.0 s

Abbildung 3.: Nuklidkarte zur Übersicht für (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)- und (<sup>60</sup>Fe/Fe)-Messung.<sup>2</sup>

einer Abdeckung von 10 m Wasser-Äquivalent überwiegen die Myon-Einfangreaktionen, wie <sup>56</sup>Fe( $\mu^{-}$ , $\nu_{\mu}$ 3n)<sup>53</sup>Mn [21, 22]. Das Isotopenverhältnis kann zur Bestimmung von Intensitätsänderungen der kosmischen Strahlung und Datierung von langzeit Expositionszeiten von Oberflächen verwendet werden [20].

Die Unterdrückung des Isobars <sup>53</sup>Cr ist durch die geringe relative Kernladungszahldifferenz  $\Delta Z/Z_R$ =4% erschwert. Die relative Häufigkeit der stabilen Chrom-Isotope mit einem <sup>53</sup>Cr Anteil von 9,5% verkompliziert die Messung. Zur Unterdrückung von <sup>53</sup>Cr kann die Injektion als Fluorid <sup>53</sup>MnF<sup>-</sup> gewählt werden [23].

Das Ziel des SFB-1211, "Earth - Evolution at the Dry Limit", ist die volle Einsatzfähigkeit für <sup>53</sup>Mn-Messungen von Proben aus Mikrometeoriten bis Ende 2017. Isotopenverhältnisse in <sup>53</sup>Mn-Meteoriten liegen in der Größenordnung  $10^{-9}$  bis  $10^{-11}$  [24, 25]. Bis Ende 2019 sollen im Anschluss niedrige (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Isotopenverhältnisse im Bereich  $10^{-11}$  bis  $10^{-13}$  für die *in-situ* <sup>53</sup>Mn-Messung erreicht werden [26, 27]. Dieses Detektionslimit wird bisher nur an Beschleunigern mit einer Terminalspannung größer 11,5 MV erreicht.

#### (<sup>60</sup>Fe/Fe)

Das Radionuklid <sup>60</sup>Fe hat eine Halbwertszeit von T<sub>1/2</sub>=2,62 Ma [28]. Es wird hauptsächlich durch den r- und s-Prozess in der Endphase von massereichen Sternen und durch Supernovae produziert [29]. Die s-Prozess Reaktion <sup>59</sup>Fe(n, $\gamma$ )<sup>60</sup>Fe dominiert bei der Produktion [29, 30, 31]. Das Isotopenverhältnis in Tiefseemangankrusten kann zur Untersuchung der Nukleosynthese in erdnahen stellaren Ereignissen verwendet werden [32].

Die Unterdrückung des Isobars <sup>60</sup>Ni ist bei hohen Ionenenergien durch die relative Kernladungszahldifferenz  $\Delta Z/Z_R=7,7\%$  nicht problematisch. Erschwert wird die Messung von tiefen 10<sup>-16</sup> Isotopenverhältnissen durch die relative Häufigkeit der stabilen Nickel-Isotope mit einem <sup>60</sup>Ni Anteil von 26,22%. Vorteilhaft ist die höhere Kernladungszahl des Isobars <sup>60</sup>Ni im Vergleich zu <sup>60</sup>Fe. Streuungen bei

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Erstellt mit Nuclids2tex, Lebensdauern und Zerfallsarten nach National Nuclear Data Center, http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/indx\_sigma.jsp, Abgerufen am 25.07.17.

Energieverlustmessungen tragen hierdurch schwächer zu einem Untergrund bei. Entscheidend ist bei der Messung dieser geringen Isotopenverhältnissen eine hohe Transmission.

#### 1.2. Wechselwirkung von Ionen mit Materie

Hohe Unterdrückungen der interferierenden Isobare der zu messenden Radionuklide bedürfen hoher Ionenenergien, um über den differentiellen Energieverlust (dE/dx) hohe Effizienzen zu erreichen [33]. Dabei werden Detektoren verwendet, die üblicherweise in der Kernphysik zur Teilchenidentifikation genutzt werden. In ihnen werden die Isobare in Abhängigkeit von der Kernladung getrennt [4], wobei die Ionen verschiedener Masse zuvor in einem Hochenergie-Massenspektrometer über die ionische Ladung des Atoms getrennt wurden. Die Unterdrückung wird maßgeblich durch den maximal möglichen Energieverlustunterschied von Radionuklid und Isobar sowie das Energiestraggling und das Winkelstraggling begrenzt. Ebenso beeinflussen Großwinkelstreuungen im Detektor die Sensitivität [34].

Für mittelschwere ( $45 \le A \le 89$ ) und schwere Radionuklide ( $90 \le A$ ) werden vielfach aufeinanderfolgende Energieverlustselektionen verwendet, um den mit der relativen Kernladungszahldifferenz  $\Delta Z/Z_R$  geringer werdenden maximalen Energieverlustunterschied zu kompensieren [7]. Nur bei hohen differentiellen Energieverlustunterschieden können genügend Radionuklidionen vom Untergrund getrennt werden. Die Sensitivität wird außerdem maßgeblich durch die Transmission beeinflusst. Werden Radionuklidionen nicht in das Detektorsystem transportiert, verschlechtert sich die Effizienz. Dies geschieht z.B. durch die Populierung verschiedener Ladungszustände nach Stripper- oder Degrader-Folien [35], ebenso durch Stöße und Umladungen am Restgas [36, 37].

#### 1.2.1. Ladungszustände

Eine Schlüsselrolle bei allen AMS-Messungen an Tandembeschleunigern spielt die Populierung verschiedener Ladungszustände, da durch das Hochenergie-Massenspektrometer immer nur ein Ladungszustand des Radionuklids ausgewählt wird. Die Messungen werden daher im günstigsten Fall mit der stärksten Ladungszustandskomponente durchgeführt. Alle Ionen in den anderen Ladungszuständen erhöhen den Transmissionsverlust und verringern die Effizienz und damit die Sensitivität. Dieser Sachverhalt wird zu Gunsten des höher werdenden differentiellen Energieverlustunterschieds bei der Verwendung höherer Ladungszustände vernachlässigt.

Ein semiempirischer Formalismus zur Berechnung der Ladungszustände nach dem Durchgang durch eine dünne Folie wurde von Sayer vorgeschlagen [35]. Auch die Berechnungen von Ladungszuständen nach dem Durchgang durch eine De-



Abbildung 4.: Ladungszustandsverteilung zum Vergleich der Forschungseinrichtungen, die (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Messungen durchgeführt haben. Berechnete Ladungszustandsverteilung nach Sayer [35]. Injektion von <sup>53</sup>MnO<sup>-</sup> mit 83 kV in den Beschleuniger. Die prozentuale Populierung der Ladungszustände wurde aus der Energie der <sup>53</sup>Mn Ionen im Terminal berechnet. Angegeben sind die berechneten Ladungszustandsintensitäten aus den Terminalspannungen und Ladungszuständen in der Literatur von: CIAE  $U_T$ =11,5 MV q=11<sup>+</sup> [38], MLL  $U_T$ =13 MV q=11<sup>+</sup> [26] und ANU  $U_T$ =14,4 MV q=11<sup>+</sup> [25].

grader-Folie sind damit möglich. Bei der Berechnung wird die Energie nach dem Energieverlust in der Degrader-Folie verwendet. Die zugrundeliegende Theorie der Wechselwirkungen sind von Betz [39] zusammengetragen.

$$F_{q} = \frac{F_{q}/F_{m}}{\sum_{q}F_{q}/F_{m}}$$

$$\frac{F_{q}}{F_{m}} = \exp\left(\frac{-0.5 \cdot t^{2}}{1 + \epsilon t}\right)$$

$$\frac{q_{0}}{Z} = 1 - 1.03 \cdot \exp(-47.3 \cdot Z^{-0.38} \cdot \beta^{0.86})$$

$$t = (q - q_{0})/\rho$$

$$\rho = 0.48 \cdot Z^{0.45} \cdot \left(\frac{q_{0}}{Z} \cdot \left(1 - \frac{q_{0}}{Z}\right)\right)^{0.26}$$

$$\epsilon = \rho \cdot (0.0007 \cdot Z - 0.7 \cdot \beta)$$

Dabei ist  $q_0$  die maximale Ladungszustandsintensität,  $F_m=1/q_0$  und  $\beta c$  die Geschwindigkeit.

Von besonderer Bedeutung ist im Weiteren die Ladungszustandsverteilung der Radionuklide für die (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)- und (<sup>60</sup>Fe/Fe)-Messungen. Bei der Berechnung wird die maximal mögliche Terminalspannung sowie der Einschuss der Moleküle MnO<sup>-</sup> und FeO<sup>-</sup> berücksichtigt. Die resultierenden Ladungszustandsintensitäten mit Energien und Magnetfeldern sind in Anhang A Tab. 27 und Tab. 28 zusammengefasst. Die theoretischen Ladungszustandsintensitäten für <sup>53</sup>Mn sind in Abb.

Tabelle 1.: Übersicht der Beschleuniger von verschiedenen Forschungseinrichtungen, die (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Messungen durchgeführt haben, mit den Betriebsparametern: Terminalspannung, verwendeter Ladungszustand und berechnete Ladungszustandsintensität nach Sayer [35] bei Injektion des Moleküls MnO<sup>-</sup>.

Labor	Beschleuniger		$U_T$ [MV]	LΖ	Int. [%]	E [MeV]	Literatur
CologneAMS	FN	10 MV	9,5	$10^{+}$	11,5	102	[40, 33]
CIAE	HI	13 MV	11,5	$11^{+}$	7,6	135	[38, 41]
MLL	MP	14 MV	13,0	$11^{+}$	11,7	153	[26, 23]
ANU	14UD	15 MV	14,4	$11^{+}$	15,7	169	[25]

4 dargestellt. Die Literaturwerte von Forschungseinrichtungen, bei denen (<sup>53</sup>Mn/ <sup>55</sup>Mn)-Messungen durchgeführt wurden, finden sich in Tab. 1. Angegeben sind die berechneten Ladungszustandsintensitäten aus den angegebenen Terminalspannungen und Ladungszuständen zu Abb. 4.

#### 1.2.2. Energieverlust

Ionenenergien, die bei AMS-Messungen erreicht werden, liegen meist unterhalb der Coulombbarriere, so dass bei der Wechselwirkung mit einem Medium keine Kernreaktionen berücksichtigt werden müssen. Deshalb muss nur die elektromagnetische Wechselwirkung beachtet werden. In nicht-relativistischer Näherung wird die Wechselwirkung der Ionen mit quasi freien Elektronen durch die von Bloch korrigierte Bethe-Formel beschrieben [42]. Programme, die eine Vorhersage des Energieverlustes in Materie ermöglichen und in dieser Arbeit verwendet werden, sind SRIM [43] und LISE++ [44]. Sie basieren auf der ersten vereinheitlichenden Theorie von Lindhard, Scharff und Schiott, welche umfassend erweitert und verfeinert wurde. Diese Programme ermöglichen die Berechnung des Energieverlustes in einem Compoundtarget als lineare Kombination des Energieverlustes der einzelnen Elemente, bekannt als Braggsche-Regel [45]. Diese findet hier Anwendung bei der Berechnung des Energieverlustes in den Degrader-Folien.

Für mittelschwere Ionen im Energiebereich 25 MeV $\leq E \leq 60$  MeV wurden verschiedene Simulationen des Energieverlustes in 1 µm Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-Degrader-Folien (SiN) überprüft, siehe Feuerstein [12]. Gute Übereinstimmungen wurden mit LISE++ erzielt bei der Verwendung des Formalismus von Lindhard und Sørensen, genannt: ATIMA 1.2 WITHOUT LS-CORRECTION [42]. Die Berechnungen von SRIM unterschätzen die gemessenen Energieverluste.

#### 1.2.3. Energiestraggling

Durch das große Interesse an Energiestraggling-Daten zur Voraussage und Auswertung von Messdaten in der Ion-Beam-Analysis (IBA) gibt es eine Vielzahl an Veröffentlichungen über leichte Ionen in großen Energiebereichen [46]. Für mittelschwere Ionen im Energiebereich 25 MeV $\leq E \leq 60$  MeV wurde der theoretische Energieverlust verschiedener Modelle mit Messungen für 1 µm SiN-Degrader-Folien überprüft, siehe Feuerstein [12]. Gute Übereinstimmungen gab es mit dem semiempirischen Formalismus von Yang und O'Connor [47]. Allgemein ist das Energiestraggling definiert als mittlere quadratische Abweichung des Energieverlustes  $E_{\text{loss}}$ , vgl. Ramirez et al. [48] oder Lindhard et al. [42]:

$$\Omega^2 = \langle (E_{\rm loss} - \langle E_{\rm loss} \rangle)^2 \rangle$$

Bei der Berechnung von Compoundtargets wird die quadratische Summe aus den einzelnen Elementen bestimmt, vgl. Feuerstein [12]. Vergleichbar ist dies mit der Berechnung durch aufeinanderfolgendes Energiestraggling  $\Omega_i^2$  in *i* verschiedenen Schichten einer Atomsorte.

$$\Omega^2 = \sum_{i=1}^n \Omega_i^2$$

Abweichungen von der Gültigkeit dieses Verhaltens wurden von Siegmund für zweiatomige Gase gezeigt [49], bei denen die gemessenen Energiestragglingparameter höher sind als die einzelnen Summanden, vgl. auch Besenbacher et al. [46].

#### 1.2.4. Winkelstraggling

Das Winkelstraggling beim Durchgang von geladen Teilchen durch dünne Folien kann durch eine Kleinwinkelnäherung als Diffusion der Winkelverteilung betrachtet werden [50]. Die erste quantitative Beschreibung des Winkelstragglings, nach der die Verteilung durch eine Gaußfunktion der Winkelverteilung  $\Theta$  approximiert werden kann, wurde von Williams im Jahr 1939 vorgeschlagen. Weiterentwickelte Theorien, die als vielfach Streuung am abgeschirmten Coulombfeld der isolierten Atome beschrieben werden, sind bei Marion und Zimmerman aufgeführt [51]. Dort wird der weitverbreitete Formalismus von Molière hervorgehoben [52, 53], der von Nigam et al. [54] auf Grund einer falschen Näherung korrigiert wurde. Es resultieren nur kleine Abweichungen durch diese Korrektur, da sie nur Auswirkungen auf Ordnungen größer gleich zwei hat. Bethe zeigte, dass das Winkelstraggling hauptsächlich von der Flächenbelegung der Streufolien abhängt und nahezu unabhängig von der Kernladungszahl ist [50]. Auch das Winkelstraggling von relativistischen Schwerionen steigt linear mit der Flächenbelegung der Streufolie [55, 56].

Zur Berechnung des Winkelstragglings in SiN-Degrader-Folien wurde das Programm Lise++ verwendet [44]. Es wird empfohlen, den Formalismus von Anne et al. [57] zu verwenden, da gute Übereinstimmungen der Winkelstragglingmessungen für mittelschwere Ionen im Energiebereich 25 MeV $\leq E \leq 60$  MeV gezeigt werden konnten [12].

#### 1.3. Isobarentrennungsvermögen und -faktor

Es gibt verschiedene Maße für die Fähigkeit, Isobare voneinander zu trennen.

Ein Maß ist das Isobarentrennungsvermögen U, welches von Knie et al. [58] vorgeschlagen wurde. Es ist definiert als Quotient aus Peakabstand D, von Radionuklid und Isobar, und der größeren Halbwertsbreite  $W=FWHM=2(2ln(2))^{1/2}\Omega$  der beiden Komponenten. Es berücksichtigt keine Unterschiede der Halbwertsbreiten und keine Abweichungen von gaußförmigen Verteilungen.

$$U = \frac{D}{W} = \frac{\text{Peakabstand}}{\text{FWHM}}$$

Ein Maß, das den Unterschied der Halbwertsbreiten berücksichtigt, ist das mittlere Isobarentrennungsvermögen  $\overline{U}$ , welches von Feuerstein [12] vorgeschlagen wurde. Es verwendet den Mittelwert  $\overline{W}$  der Halbwertsbreiten  $W_1$  und  $W_2$ . Es berücksichtigt keine Abweichungen von gaußförmigen Verteilungen.

$$\overline{U} = \frac{D}{\frac{1}{2}(W_1 + W_2)} = \frac{D}{\overline{W}}$$

Ein Maß, das den tatsächlichen Untergrund berücksichtigt, ist der Isobarentrennungsfaktor  $U_f$ , welcher von Vockenhuber et al. [59] vorgeschlagen wurde. Er kann aus der Blank-Messung bestimmt werden. Er ist definiert als Quotient aus Anzahl der Counts der Isobare N(I) im Hauptisobarenpeak in einer gewählten Region (iROI) und der Anzahl der Counts der Isobare N(I) in einer gewählten Region des Radionuklids (rROI). Die Grenzen der beiden Regionen iROI und rROI müssen gesondert angegeben werden, ebenso wie der prozentuale Anteil des Radionuklids in der rROI.

$$U_f = \frac{N(I)_{iROI}}{N(I)_{rROI}}$$

Ein Maß, das die Transmission des Radionuklids  $T_R$  berücksichtigt, wurde von Martschini et al. [60] vorgeschlagen. Es ist definiert als Quotient der Transmissionen von Radionuklid und Isobar und kann als normalisierter Isobarentrennungsfaktor bezeichnet werden, da er sich unabhängig von den Gesamtzahlen der Komponenten verhält, wenn gaußförmige Verteilungen zugrunde gelegt werden.

$$U_n = \frac{T_R}{T_I} = \frac{1}{T_I} \cdot T_R = \frac{N(I)_{\text{total}}}{N(I)_{\text{rROI}}} \cdot T_R = \frac{N(I)_{\text{total}}}{N(I)_{\text{rROI}}} \cdot \frac{N(R)_{\text{rROI}}}{N(R)_{\text{total}}}$$

In [12] wird aus dem mittleren Isobarentrennungsvermögen  $\overline{U}$  ein funktionaler Zusammenhang zum normalisierten Isobarentrennungsfaktor  $U_n$  und der Transmission  $T_R$  für einseitiges Beschneiden der Gaußverteilungen gezeigt.

Die Isobarentrennungsfaktoren, die in Kapitel 1.5 und Kapitel 3 berechnet werden, gehen von gleichen Intensitäten des Radionuklids und des Isobars aus, d.h.  $N(I)_{total} = N(R)_{total}$ . Die Transmission des Radionuklids  $T_R$  wird separat angegeben.

$$U_n = \frac{N(R)_{\rm rROI}}{N(I)_{\rm rROI}}$$

Die rROI wird in Kapitel 3.5 auf zwei Seiten der Verteilungen gewählt und kann daher nicht durch die Faktoren in [12] aus dem mittleren Isobarentrennungsvermögen  $\overline{U}$  berechnet werden.

#### 1.4. Sensitivität, Effizienz und Detektionslimit

Die zentrale Frage bei AMS Messungen ist:

Wie viele Atome in einer Probe welcher Probengröße kann in welcher Zeit gemessen werden und wie groß ist der Messfehler?

Ausgehend von einer festgelegten Probengröße  $m_{\rm smp}$  und festem Isotopenverhältnis  $C=({}^{53}{\rm Mn}/{}^{55}{\rm Mn})$  kann die Anzahl von  ${}^{55}{\rm Mn}$  Atomen N(S) und die Anzahl von  ${}^{53}{\rm Mn}$  Atomen N(R) aus den molaren Massen, der Probe  $M_{\rm smp}$  und des stabilen Isotops  $M_{\rm Mn}$ , über die Avogadro-Konstante  $N_A=6,022\times10^{23}$  mol $^{-1}$  bestimmt werden.

$$N(R) = C \cdot N(S) = C \cdot \frac{m_{\rm smp} \cdot M_{\rm Mn} \cdot N_A}{M_{\rm smp}^2}$$

Ist die totale Transmission  $T_{total}$  der Messung inklusive Injektor-Transmission bekannt, so kann die Anzahl der Ionen im Detektor bestimmt werden, die als Radionuklid identifiziert werden.

$$N(R)_{\rm rROI} = T_{\rm total} \cdot N(R)$$

Der relative Fehler des Isotopenverhältnisses  $\Delta C$  wird vom statistischen Fehler der Poisson-Statistik der Ereignisse  $\sqrt{N(R)_{rROI}}$  dominiert.

$$\Delta C \approx \frac{1}{\Delta N(R)_{\rm rROI}} = \frac{1}{\sqrt{N(R)_{\rm rROI}}} \ [\%]$$

Aus der Vorgabe des Messfehlers ergibt sich eine untere Grenze für die Messung von Isotopenverhältnissen.

$$C = \frac{N(R)}{N(S)} = \frac{N(R)_{\rm rROI}}{T_{\rm total} \cdot N(S)} = \frac{1}{T_{\rm total} \cdot N(S) \cdot \Delta C^2}$$
(1.1)

**Beispiel:** Um eine Präzision der Isotopenverhältnismessung von 1% zu erreichen, bedarf es 10.000 Ereignisse im Detektor, die eindeutig als Radionuklid identifiziert werden. Die Anzahl der Radionuklid-Atome in der Probe, die für diese Anzahl an Ereignissen nötig ist, wird durch die totale Transmission  $T_{\text{total}}$  festgelegt. Ist  $T_{\text{total}}$ = 0,0001%, so bedarf es 10<sup>10</sup> Atome des Radionuklids in einer Probe. Bei einer Probengröße von 1 mg MnO<sub>2</sub>, die 4,4×10<sup>18 55</sup>Mn Atome enthält, entspricht dies einem Isotopenverhältnis von 2,3×10<sup>-9</sup>.

Aus der doppeltlogarithmischen Darstellung von Gleichung 1.1 und den Ergebnissen von verschiedenen (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Messungen aus der Literatur, [61, 26, 25, 22] so wie den Ergebnissen aus dieser Arbeit, folgt direkt ein allgemeines Maß für die Sensitivität durch die Projektion des Isotopenverhältnisses entlang der Transmissionsgeraden auf einen festen Fehler, siehe Abb. 5.

Die Normalisierung der gemessenen Isotopenverhältnisse kann auf einen beliebigen Fehler erfolgen.

$$S_x = 10^{\log_{10}(C \cdot \Delta C^2) - 2 \cdot \log_{10}(x)} = \frac{C \cdot \Delta C^2}{x^2}$$

Diese fehlernormalisierte Sensitivität entspricht bei einem Fehler von 1% nach der Transformation  $x \mapsto \log_{10}(x)$  dem Schnittpunkt mit der y-Achse.

$$S_{1\%} = 10^{\log_{10}(C \cdot \Delta C^2)} = C \cdot \Delta C^2$$

Die fehlernormalisierte Sensitivität  $S_x$  ist unabhängig von der Probengröße und der Transmission und kann zum Vergleich der AMS-Systeme verwendet werden. Da diese Definition aus der Messung bestimmt wird, sind Streuungen und der isobarische Untergrund berücksichtigt. Für die Bestimmung aus der Transmission folgt nur eine untere Grenze.

Aus der Darstellung der Literaturwerte von ( $^{53}$ Mn/ $^{55}$ Mn)-Isotopenverhältnismessungen wird deutlich, dass bei diesen Messungen  $S_{10\%}$  Sensitivitäten üblich sind. Sensitivitäten unter  $S_{1\%}$  werden bei Kohlenstoffmessungen erreicht.

Die totale Effizienz  $\mathcal{E}_{total}$  ist das Produkt aus Sputter-Rate  $R_{sp}=m_{smp}/t$  und totaler Transmission  $T_{total}$ .

$$\mathcal{E}_{\text{total}} = R_{\text{sp}} \cdot T_{\text{total}}$$

Aus ihr kann die Zeit bestimmt werden, in der eine bestimmte Sensitivität  $S_x$  zu einer Probe mit einer bestimmten Konzentration N(S)/ $m_{smp}$  erreicht werden kann.

$$C = \frac{N(R)_{\text{rROI}}}{\frac{N(S)}{m_{\text{smp}}} \cdot \mathcal{E}_{\text{total}} \cdot t} = \frac{m_{\text{smp}} \cdot N(R)_{\text{rROI}}}{N(S) \cdot R_{\text{sp}} \cdot T_{\text{total}} \cdot t}$$
$$S_x = \frac{10^4 \cdot m_{\text{smp}}}{N(S) \cdot R_{\text{sp}} \cdot T_{\text{total}} \cdot t \cdot x^2}$$



Abbildung 5.: Die fehlernormalisierte Sensitivität. Gezeigt ist das minimal messbare Isotopenverhältnis (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn) für 1 mg MnO<sub>2</sub> für verschiedene totale Transmissionen in Abhängigkeit vom statistischer Fehler. Die gemessene Sputter-Effizienz von 3‰ ist in rot gestrichelt eingezeichnet. Die Transmission vom Injektor zum Detektor von CIAE wird mit 6‰ angegeben [61]. Das entsprechende Detektionslimit berücksichtigt die Sputter-Effizienz von 3‰ und ist in blau dargestellt. Die Darstellung der Messwerte aus der Literatur ist unabhängig von Transmission und Probengröße. Angegeben sind die Messungen von Dong et al. [61], Schäfer et al. [26], Knie et al. [62, 58], Gladkis et al. [25], Fujioka et al. [22] und die ersten (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Messungen zweier Standards  $C_s$ =1,047×10<sup>-9</sup> und  $C_s$ =1,043×10<sup>-10</sup> aus dieser Arbeit, siehe Kapitel 4.2.

**Beispiel:** Bei einer <sup>55</sup>Mn Konzentration N(S)/ $m_{smp}$ =4,4×10<sup>21</sup> Atome/g, einer Sputter-Rate von 1 mg/h und einer totalen Transmission von *T*=0,00001% folgt eine fehlernormalisierte Sensitivität *S*<sub>10%</sub> von:

$$S_{10\%} = 2,27 \times 10^{-10} \frac{1}{t}$$
 mit: t [h]

Das Isotopenverhältnis zwischen Radionuklid und stabilem Isotop mit Transmissionsverlusten im System zur Isobarenunterdrückung wird durch die Formel

$$C = \frac{N(R)_{\rm rROI} \cdot e}{T \cdot I(S) \cdot t}$$

nach Poutivtsev [20] bestimmt, bei der die Anzahl der nachgewiesenen Radionuklid Atome N(R)<sub>rROI</sub>, die Elementarladung e= $1,602 \times 10^{-19}$  C, die Transmission *T* zwischen Offset-Cup und Gasdetektor, der Ionenstrom des stabilen Isotops I(S) und die Messzeit t berücksichtigt wird. Die Transmission wird aus der Messung einer Standardprobe bestimmt.

Das Detektionslimit von Isotopenverhältnissen  $C_L$  wird maßgeblich durch den Untergrund der Blank-Messung bestimmt. Die Curie-Definition des Detektionslimits bei der Untergrundkorrektur N<sub>b</sub>(R)<sub>rROI</sub>=N(R)<sub>rROI</sub>-N(I)<sub>rROI</sub> stellt sicher, dass



Abbildung 6.: Fehlernormalisierte Sensitivität  $S_{10\%}$  zur Bestimmung der Messdauer, ausgehend von der totalen Effizienz  $\mathcal{E}_{total}$ , mit  $R_{sp}=1$  mg/h,  $S_{10\%}$  und <sup>53</sup>Mn Konzentration von  $4.4 \times 10^{21}$  Atomen/g. Messwerte von Dong et al. [61], Knie [62] und aus dieser Arbeit, siehe Kapitel 4.2.

die Wahrscheinlichkeit einer falsch-positiv Messung unter 5% liegt [63]. Berücksichtigt werden dabei nur gaußverteilte Größen. Bei kleinsten Signalen sind die Voraussetzungen der Abschätzung nicht erfüllt und es wird auf die Arbeiten von Feldman und Cousins verwiesen [64].

$$N_b(R)_{\rm rROI} \ge 2,33 \cdot \sqrt{N(I)_{\rm rROI}}$$

Das Detektionslimit  $C_L$  ist bestimmt durch das Isotopenverhältnis des Blanks  $C_B$ und die Anzahl der Untergrund-Ereignisse N(I)<sub>rROI</sub>. Bei der Messung eines Isotopenverhältnisses mit gleicher Anzahl von stabilen Atomen N(S)=N<sub>B</sub>(S) bzw. gleichem Untergrund durch das Isobar der Blank Messung folgt:

$$C_L = \frac{N_b(\mathbf{R})_{\mathrm{rROI}}}{N(S)} = \frac{N_b(\mathbf{R})_{\mathrm{rROI}}}{N(I)_{\mathrm{rROI}}} \cdot C_B \ge \frac{2,33}{\sqrt{N(I)_{\mathrm{rROI}}}} \cdot C_B = 2,33 \cdot \frac{\sqrt{N(I)_{\mathrm{rROI}}}}{N(I)}$$

Für die (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Isotopenverhältnismessungen aus Kapitel 4.2 bzw. Abb. 5 folgt mit N(I)<sub>rROI</sub>=6 und  $C_B$ =7,57×10<sup>-13</sup> das Detektionslimit:

$$C_L = 7,20 \times 10^{-13}$$

#### 1.4.1. Variationskoeffizient

Ein Maß für die Streuung der Messungen ist der Variationskoeffizient der mittleren fehlernormalisierten Sensitivität der Standard-Proben, die in gleichen Zeiten

Tabelle 2.: Ionenströme bei (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Messungen in der Literatur. Die Zahlen in Klammern sind berechnete Werte, die nicht in den entsprechenden Veröffentlichungen gegeben sind. Es finden sich keine Ionenströme bei Poutivtsev et al. [23]. Bei Gladkis et al. [25], Fujioka et al. [22] und Dong et al. [38] werden Spektren gezeigt, aber keine Zahlen der Radionuklid Counts und keine Ionenströme angegeben.

Labor	( <sup>53</sup> Mn/ <sup>55</sup> Mn)	I(S) [pnA]	T [%]	Zeit [s]	N(R) rROI	Fehler $\sqrt{N}/N$ [%]	Lit.
MLL	$4,40 \times 10^{-9}$	0,50	(2,4)	1260	470	4,9	[62]
CIAE	$3,73 \times 10^{-12}$	(0,15)	-	1800	60	12,9	[61]
	$4,79 \times 10^{-13}$	(0,10)	-	4000	11	30,2	[61]
CologneAMS	$1,05 \times 10^{-9}$	2,83	2,0	608	233	6,6	
	$1,04 \times 10^{-10}$	0,60	7,5	1207	36	16,7	

gemessen wurden  $S_{t,x}$ . Der Variationskoeffizient ist unabhängig von der Wahl der Fehlernormalisierung.

$$v = \frac{\sigma_{t,x}}{\langle S_{t,x} \rangle} = \frac{\sqrt{\langle (S_{t,x} - \langle S_{t,x} \rangle)^2 \rangle}}{\langle S_{t,x} \rangle}$$

Für die (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Messungen aus Kapitel 4.2, bzw. Abb. 6, folgt mit der mittleren fehlernormalisierten Sensitivität der Variationskoeffizient:

$$v = rac{\sigma_{600s,10\%}}{\langle S_{600s,10\%} 
angle} = rac{0,99 imes 10^{-10}}{3,35 imes 10^{-10}} = 29,6\%$$

#### 1.5. Isobarentrennung

Die Isobarentrennung von Ionen mit gleicher Geschwindigkeit durch Energieverlust im Medium erfolgt über die Abhängigkeit des differentiellen Energieverlustes vom mittleren Ladungszustand,  $(dE/dx) \propto \bar{q}^2$ . Die Trennung wird von der intrinsischen Geschwindigkeitsverteilung der Ionen und vom Energiestraggling  $\Omega$  im Medium begrenzt.

Zur Berechnung des Energieverlustes wurde ATIMA 1.2 WITHOUT LS-COR-RECTION verwendet [42]. Das Energiestraggling wurde mit dem Formalismus von Yang und O'Connor berechnet [47]. Beide Formalismen wurden von Feuerstein im Energiebereich 25 MeV $\leq E \leq 60$  MeV für SiN-Degrader-Folie mit einer Dicke von 1 µm überprüft und zeigten hinreichende Übereinstimmung für die Vorhersage des Energieverlustes und des Energiestragglings für mittelschwere Ionen der Masse 56 u [12].

Die Berechnung des Energieverlustes wurde mit dem Programm LISE++ durchgeführt [44]. Zuvor wurde die Stöchiometrie und die Dichte der SiN-Degrader-Folie, von SILSON LTD, mit Rutherford-Backscattering gemessenen, Si<sub>3</sub>N<sub>3,75</sub> und  $\rho$ =2,7 g/cm<sup>3</sup>. Diese wurde auch bei der Berechnung des Energiestragglings nach Yang und O'Connor berücksichtigt. Bei beiden Berechnungen wurde eine mittlere



Abbildung 7.: Energieverlust pro Foliendicke nach ATIMA 1.2 WITHOUT LS-CORRECTION [42] von 100 MeV Ionen in SiN-Degrader-Folien, Si<sub>3</sub>N<sub>3,75</sub>,  $\rho$ =2,7 g/cm<sup>3</sup>. (a) Energieverlust der Isobare bei (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Messung. (b) Analogmessung durch den Energieverlust von <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr. Der Energieverlust von <sup>54</sup>Mn wird bei der Messung interpoliert. (c) Energieverlust der Isobare bei (<sup>60</sup>Fe/Fe)-Messung. (d) Analogmessung durch den Energieverlust von <sup>58</sup>Ni und <sup>58</sup>Fe. Die Energieübertragungskoeffizienten  $\mu_E$  (Steigungen der Geraden) sind in Tab. 3 aufgeführt.

Anfangsenergie der Ionen von 100 MeV zugrunde gelegt. Die initiale Energieverteilung  $\Omega_{ini}$ =0,24(1) MeV vor der Degrader-Folie wurde im Rahmen dieser Arbeit gemessen und wird in der Berechnung berücksichtigt, siehe Kapitel 3.5. Das Ziel der Rechnung ist die Bestimmung der Isobarenunterdrückung in Abhängigkeit von der Foliendicke, aus der die optimale Foliendicke bei maximaler Isobarenunterdrückung bestimmt werden kann.

Die Berechnungen wurden für die Radionuklide und deren Isobare durchgeführt, die bei der Messung der Isotopenverhältnisse ( $^{53}$ Mn/ $^{55}$ Mn) und ( $^{60}$ Fe/Fe) beteiligt sind, sowie für die stabilen Isobare in der Massenregion 53<A<60, die zu Testzwecken verwendet werden können. Der berechnete Energieverlust von  $^{53}$ Mn und  $^{53}$ Cr zeigt, verglichen mit  $^{54}$ Mn und  $^{54}$ Cr, eine hohe Analogie im Verhalten

<sup>54</sup>Fe



(a) Energiestraggling von  $^{53}$ Mn und  $^{53}$ Cr.



(b) Analogmessung zu (a) durch Messung des Energiestragglings von <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr. Das Energiestraggling von <sup>54</sup>Mn kann interpoliert werden.



(d) Analogmessung zu (c) durch Messung des Energiestragglings von <sup>58</sup>Ni und <sup>58</sup>Fe.

Abbildung 8.: Energiestraggling nach Yang und O'Connor [47] von 100 MeV Ionen in Siliziumnitrid, Si<sub>3</sub>N<sub>3,75</sub>,  $\rho$ =2,7 g/cm<sup>3</sup>. (a) Energiestraggling der Isobare bei (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Messung. (b) Analogmessung durch das Energiestraggling von <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr. Das Energiestraggling von <sup>54</sup>Mn wird interpoliert. (c) Energiestraggling der Isobare bei (<sup>60</sup>Fe/Fe)-Messung. (d) Analogmessung durch das Energiestraggling von <sup>58</sup>Ni und <sup>58</sup>Fe. Die Koeffizienten  $R_m$  und  $\Omega_{R_m}$  (Endpunkt des Ellipsenabschnitts) sind in Tab. 3 aufgeführt.

der Isotope. Gleiches gilt für <sup>60</sup>Fe und <sup>60</sup>Ni mit <sup>58</sup>Fe und <sup>58</sup>Ni. Da <sup>54</sup>Mn nicht stabil ist ( $T_{1/2}$ =312,2 d [65]), kann ersatzweise das stabile Isotop <sup>54</sup>Fe gemessen werden. Der Energieverlust und das Energiestraggling von <sup>53</sup>Mn kann interpoliert werden. Diese Art der Messungen werden Analogmessungen genannt. Die resultierenden Energieverluste pro Foliendicke sind in Abb. 7 dargestellt. Die Restenergie ist die Differenz aus Anfangsenergie und Energieverlust. Die Energieübertragungskoeffizienten  $\mu_E$  sind in Tab. 3 aufgeführt und stehen für die Steigungen der Geraden in Abb. 7.

$$E' = E - E_{\text{loss}} = 100 \text{ MeV} - \mu_E \cdot d \tag{1.2}$$

Die Berechnung des Energiestragglings nach Yang und O'Connor [47] wurde mit den Ergebnissen des Energieverlustes durchgeführt. Dies führt bei einer Parametrisierung nach der Foliendicke *d* zu einer Ellipsengleichung, deren Verlauf eindeutig durch den Endpunkt *E*'=0 und den Nullpunkt festgelegt ist. Der Endpunkt wird definiert durch die mittlere Reichweite  $R_m=d|_{E=0}$  in einer Degrader-Folie und das zugehörige Energiestraggling  $\Omega|_{R_m}=\Omega_{R_m}$ . Physikalisch sinnvoll ist nur der positive Funktionswert  $\Omega(d) \ge 0$  mit positiver Steigung  $\partial\Omega/\partial d \ge 0$ . Das resultierende Energiestraggling ist in Abb. 8 dargestellt. Die Koeffizienten sind in Tab. 3 aufgeführt.

$$\Omega(d) = \sqrt{\left(1 - \frac{(d - R_m)^2}{R_m^2}\right)\Omega_{R_m}^2}$$

Tabelle 3.: Energieübertragungskoeffizient  $\mu_E$ , mittlere Reichweite  $R_m$  und zugehöriges Energiestraggling  $\Omega_{R_m}$  für Isotope der mittleren Massenregion. Der gesamte Verlauf des Energiestragglings in Abhängigkeit der Schichtdicke ist durch  $R_m$  und  $\Omega_{R_m}$  bestimmt, siehe Abb. 8.

Isotop	$\mu_E$ [MeV/µm]	$R_m$ [µm]	$\Omega_{R_m}$ [MeV]
<sup>53</sup> Cr	8,065	12,40	0,523
<sup>54</sup> Cr	8,074	12,39	0,518
<sup>53</sup> Mn	8,445	11,84	0,529
<sup>54</sup> Mn	8,450	11,87	0,524
<sup>54</sup> Fe	8,818	11,34	0,529
<sup>58</sup> Fe	8,821	11,33	0,510
<sup>60</sup> Fe	8,818	11,34	0,502
<sup>58</sup> Ni	9,512	10,51	0,522
<sup>60</sup> Ni	9,499	10,53	0,513

#### 1.5.1. Degrader-Folie und elektrostatischer Analysierer

Nach dem Durchgang der Ionen durch eine Degrader-Folie werden verschiedene Ladungszustände populiert [35], wobei die Ionen den gleichen mittleren Energieverlust erfahren. Wird nach dem Durchgang durch die Folie mit einem elektrischen Feld gefiltert, z.B. mit einem ESA, so werden einzelne Ladungszustände selektiert, da die Bewegung im elektrischen Feld  $\vec{E}$  von der Ionenenergie E', vom Ladungszustand q und vom Ablenkradius  $\rho$  abhängt.

$$\left|\vec{E}\right| = \frac{2 \cdot E'}{q \cdot \rho} \left[\frac{\mathrm{MV}}{\mathrm{m}}\right]$$

Im Weiteren wird die Berechnung der Isobarentrennung speziell für den 30°-ESA am Kölner FN-Tandembeschleuniger durchgeführt, welcher einen Ablenkradius von  $\rho$ =3,5 m besitzt. Wird in die Gleichung der elektrischen Feldstärke die Restenergie aus Gleichung 1.2 eingesetzt, so erhält man für jede Degrader-Foliendicke



Abbildung 9.: Berechnung der idealen Foliendicke für die Trennung von (a) <sup>53</sup>Mn und <sup>53</sup>Cr und (b) <sup>60</sup>Ni und <sup>60</sup>Fe.

und jeden Ladungszustand die zugehörige elektrische Feldstärke zum Intensitätsmaximum der Energieverteilung. In Abb. 9 sind diese Intensitätsmaximas für die  $(^{53}Mn/^{55}Mn)$ -Messungen und  $(^{60}Fe/Fe)$ -Messungen aufgetragen. Dargestellt sind die Ladungszustände 13<sup>+</sup> (oben) bis 21<sup>+</sup> (unten). Diese Ladungszustände haben bei der Verwendung von 3-6 µm Degrader-Folien die höchste Intensität.

Bei einer Messung mit Degrader-Folie von beliebiger festgelegter Dicke und der Verwendung eines ESAs wird man, bei einem Scan über alle elektrischen Feldstärken, die Intensitätsmaximas der Energieverteilung aus dem senkrechten Schnitt der Funktionsschar erhalten. Betrachtet man nun die maximale Isobarentrennung zu beliebiger Foliendicke, d.h. den maximalen Abstand der Intensitätsmaximas im senkrechten Schnitt, so zeigt sich:

- Bei fester Foliendicke kann nur ein Ladungszustand optimal getrennt werden.
- Zu jedem gewählten Ladungszustand muss die Foliendicke gewählt werden.

Wird dies nicht beachtet, überlagern die Nachbarladungszustände des Isobars den Ladungszustand des Radionuklids. Deutlich wird dies in Abb. 9a bei einer Foliendicke von 5,3 µm. Dies ist die ideale Foliendicke zur Isobarentrennung bei Benutzung des  $13^+$  Ladungszustandes. Wird die elektrische Feldstärke dabei auf den Wert des  $20^+$  Ladungszustandes gestellt, überlagert sich dieser Ladungszustand des Radionuklids <sup>53</sup>Mn mit dem Ladungszustand  $21^+$  des Isobars <sup>53</sup>Cr. Dies wird (E/q)- oder elektrische Steifigkeit-Interferenz genannt.

Die Berechnung der idealen Foliendicke erfolgt für die Ordnung der Trennung einzeln. Trennung erster Ordnung liegt vor, wenn die mittlere Differenz der elektrischen Feldstärken der Isobare genau so groß ist wie die Differenz der elektrischen Feldstärken des Radionuklids und des Isobars im Nachbarladungszustand ( $q\pm 1$ ), d.h., wenn es noch keine Kreuzung der Kurvenscharen der Isobare gab. Trennung zweiter Ordnung liegt vor, wenn die Differenz der elektrischen Feldstärken des Radionuklids und des Isobars im übernächsten Ladungszustand ( $q\pm 2$ ) entspricht, d.h., wenn die Kurvenscharen der Isobare je Kurve eine Kreuzung aufweist. Trennung *n*-ter Ordnung liegt vor, wenn die Differenz der elektrischen Feldstärken des Radionuklids und des Isobars im Ladungszustand ( $q\pm n$ ) entspricht. Die Trennungen für  $n\geq 1$  sind durch das mit der Foliendicke steigende Energiestraggling nicht nutzbar. Eine Ausnahme kann bei stark unterschiedlichen mittleren Ladungszuständen möglich sein. Die mittlere Differenz der elektrischen Feldstärken muss für zwei Fälle unterschieden werden, in Abhängigkeit von der Kernladungszahl des Radionuklids  $Z_R$  und des Isobars  $Z_I$ .

1. Fall  $Z_R > Z_I$ , *n*-te Ordnung (Abb. 9a):

$$\frac{|\vec{E}(Z_I, q+n-1)| - |\vec{E}(Z_I, q+n)|}{2} = |\vec{E}(Z_R, q)| - |\vec{E}(Z_I, q+n)|$$
(1.3)

2. Fall  $Z_R < Z_I$ , *n*-te Ordnung (Abb. 9b):

$$\frac{|\vec{E}(Z_I, q+n-2)| - |\vec{E}(Z_I, q+n-1)|}{2} = |\vec{E}(Z_R, q)| - |\vec{E}(Z_I, q+n-1)|$$
(1.4)

Bei dieser Fallunterscheidung wird berücksichtigt, ob die Kreuzung der Funktion der Funktionsschar mit einem höheren oder niedrigeren Ladungszustand stattfindet. Die Gleichungen können nach der Foliendicke gelöst werden. Die zugehörige elektrische Feldstärke zum Ladungszustand des Radionuklids kann mit Gleichung 1.2 berechnet werden. Die Lösungen bis n=5 für die Messungen von <sup>53</sup>Mn und <sup>60</sup>Fe sind in Abb. 9 eingezeichnet. Die Lösungen der Gleichungen nach den Ordnungszahlen befinden sich im Anhang A. Die Zahlenwerte sind dort in Tab. 29 und Tab. 30 unter Berücksichtigung des Energieübertragungskoeffizienten  $\mu_E$  für <sup>53</sup>Cr, <sup>53</sup>Mn, <sup>60</sup>Fe und <sup>60</sup>Ni zusammengefasst.

Aus dem berechneten Energieverlust, dem Energiestraggling und der idealen Foliendicke kann nun die maximale Isobarentrennung berechnet werden. Dabei müssen immer beide benachbarten Ladungszustände berücksichtigt werden, da diese zum Untergrund beitragen. Bei der Berechnung wird von gleichen Anfangsverteilungen der Komponenten ausgegangen. Berücksichtigt wird dies durch die Normierung der Gaußverteilungen. Durch die festgelegten Parameter, elektrische Feldstärke bei maximaler Intensität des Radionuklids  $|\vec{E}(I_{max})|=\vec{E}$  und Energiestraggling  $\Omega_i$  des Radionuklids i=R und des Isobars i=I kann die Energieverteilung in eine räumliche Verteilung transformiert werden, abhängig von der elektrischen Feldstärke, siehe Abb. 10a und 10c. Gezeigt ist die Verteilung um <sup>53</sup>Mn im 16<sup>+</sup> Ladungszustand für eine Foliendicke von 4,77 µm und die Verteilung um <sup>60</sup>Fe im 17<sup>+</sup> Ladungszustand für eine Foliendicke von 3,19 µm.


(a)  ${}^{53}$ Mn im Ladungszustand 16<sup>+</sup> nach 4,77 µm Folie,  $U_n=10^3$ ,  $T_R=44\%$ .





(b) Berechnung der Transmission  $T_R$  von <sup>53</sup>Mn bei festgelegtem  $U_n=10^3$ .



(c)  ${}^{60}$ Fe im Ladungszustand 17<sup>+</sup> nach 3,19 µm Folie,  $U_n = 10^3$ ,  $T_R = 86\%$ .

(d) Berechnung der Transmission  $T_R$  von <sup>60</sup>Fe bei festgelegtem  $U_n=10^3$ .

Abbildung 10.: Isobarentrennung und Transmission für die Trennung von <sup>53</sup>Mn und <sup>53</sup>Cr (oben) und von <sup>60</sup>Fe und <sup>60</sup>Ni (unten). Ausgehend von gleichverteilten Ladungszuständen. (a) und (c) räumliche Verteilung, in Abhängigkeit der elektrischen Feldstärke, des ausgewählten Ladungszustandes des Radionuklids sowie des Isobars im gleichen und im Nachbarladungszustand. (b) und (d) Berechnung der Transmission bei festgelegtem normalisierten Isobarentrennungsfaktor von 10<sup>3</sup>. Die linke Stammfunktion ist zur besseren Veranschaulichung invertiert. Die Transmission von <sup>53</sup>Mn ist 44% und die Transmission von <sup>60</sup>Fe ist 86%.

Die gesetzten Gates, die im Experiment durch x-Schlitze realisiert werden, um die Ionenstrahlkomponente zu selektieren, sind in Abb. 10 durch vertikale Linien angedeutet. Die Gates sind so gewählt, dass das Verhältnis von <sup>53</sup>Cr zu <sup>53</sup>Mn bzw. <sup>60</sup>Ni zu <sup>60</sup>Fe, einem normalisierten Isobarentrennungsfaktor  $U_n$  von 10<sup>3</sup> entspricht. Aus der optimal gewählten Foliendicke folgt eine ideale Trennung bei symmetrisch gewählten Gates. Die Berechnung des Verhältnisses  $U_n=T_R/T_I$  ist in Abb. 10b und 10d veranschaulicht. Gezeigt sind die Stammfunktionen der Gaußverteilungen. Die Transmission des Radionuklids  $T_R$  ist durch die gestrichelte horizontale Linie eingezeichnet und entspricht dem Integral zwischen den gesetzten Gates. In beiden Bildern ist zur besseren Veranschaulichung die Stammfunktion der Komponente mit dem höherem Ladungszustand (links) invertiert.

$$T_{i} = \int_{l=-x_{1}\cdot\Omega_{R}}^{r=x_{2}\cdot\Omega_{R}} \frac{1}{\Omega_{i}\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{|\vec{E}|-\bar{E}}{\Omega_{i}}\right)^{2}\right) d|\vec{E}|$$
$$= \frac{1}{2}\left(1 + \exp\left(\frac{|\vec{E}|-\bar{E}}{\Omega_{i}\sqrt{2}}\right)\right) \Big|_{l=-x_{1}\cdot\Omega_{R}}^{r=x_{2}\cdot\Omega_{R}}, i=R \lor i=I$$
$$U_{n} \stackrel{!}{=} 10^{3} \stackrel{x_{1}=x_{2}=x}{\Rightarrow} \quad \text{für } {}^{53}\text{Mn:} \quad r=-l=0, 58 \cdot \Omega_{R}$$
$$\text{für } {}^{60}\text{Fe:} \quad r=-l=1, 48 \cdot \Omega_{R}$$

Aus der Berechnung folgt, dass mit einer 4,77 µm Folie für <sup>53</sup>Mn eine Transmission von  $T_R$ =44% des Ladungszustandes 16<sup>+</sup> erreicht wird. Dies entspricht einer Akzeptanz von 0, 49 · FWHM. Mit einer 3,19 µm Folie wird für <sup>60</sup>Fe eine Transmission von 86% des Ladungszustandes 17<sup>+</sup> erreicht. Dies entspricht einer Akzeptanz von 1, 26 · FWHM.

Die Grenzen der Abschätzung sind bedingt durch die Näherung bei der Berechnung der idealen Foliendicke sowie die nicht gleichverteilten Ladungszustände der Untergrund produzierenden Komponenten. Die Berechnung der Isobarentrennung setzt voraus, dass die beteiligten Verteilungen normiert sind, was nicht ohne Einschränkungen gilt. Da die Ladungszustände nicht gleich verteilt sind [35] kann die Isobarentrennung durch die Wahl des Ladungszustandes begünstigt werden. Für die Messung von <sup>53</sup>Mn eignen sich die hohen Ladungszustände, da das Maximum der asymmetrischen Intensitätsverteilung der Ladungszustände  $q_0$  proportional zu Z ist, siehe Kapitel 1.2. Für die Messung von <sup>60</sup>Fe eignen sich die niedrigen Ladungszustände.

### 1.5.2. Degrader-Folie und Time-of-Flight-System

Die Isobarentrennung mit einem Flugzeitmassenspektrometer, Time-of-Flight-System, erfolgt über die Bestimmung der Flugzeit der Ionen nach einem Energieverlust in einem Medium. Die Massenseparation mit ToF-Systemen wurde bereits 1979 von Betts [66] durchgeführt. Weiterführende Untersuchungen, die z.B. das Energiestraggling in den Kohlenstofffolien berücksichtigen, wurden von Kim et al. [67] durchgeführt. Sehr detaillierte Untersuchungen der Winkel und Positionsverteilungen wurden von Dieumegard et al. [68] gemacht. Vockenhuber et al. [37, 69, 70, 59, 71] haben ausführliche AMS-Messungen veröffentlicht, die das Isobarentrennungsvermögen von speziellen ToF-Systemen zeigen. Bei der Bestimmung des Isobarentrennungsvermögens des hier verwendeten ToF-Systems kann die Energie *E* für die hier vorkommenden Geschwindigkeiten v=l/t in nicht relativistischer Rechnung verwendet werden. Die Energieauflösung ist bestimmt durch die Unsicherheit in der Flugzeit  $\Delta t$  und des Flugweges  $\Delta l$ .



Abbildung 11.: ToF-Konfigurationen mit Tilted-Foil-Geometrie in der y-z-Ebene bei Punkt-zu-Punkt Abbildung, Detektorabstand *l*=400 cm. (a) Folien stehen parallel zueinander, mittlere Wegdifferenz der Randtrajektorien ±0,88 cm. Bei <sup>53</sup>Mn mit 80 MeV, v=1,7 cm/ns, entspricht dies einer Flugzeitdifferenz von 0,5 ns. Das Winkelstraggling, 3σ=18 mrad, erzeugt einen Wegunterschied, dessen Flugzeitunterschied vernachlässigbar ist im Vergleich zum Wegunterschied aus der Punkt-zu-Punkt Abbildung. (b) Mittlere Wegdifferenz der Randtrajektorien vernachlässigbar, wenn die Folien im 90°-Winkel zueinander stehen.

$$\frac{\Delta E}{E} = \left[ \left( \frac{2\Delta l}{l} \right)^2 + \left( \frac{2\Delta t}{t} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}$$

Durch die verschiedenen Ionentrajektorien zwischen Start- und Stop-Detektor treten in der x-z-Ebene und in der y-z-Ebene verschiedene Effekte auf, die durch die Punkt-zu-Punkt Abbildung bei der Tilted-Foil-Geometrie der Kohlenstofffolien begründet sind. In der x-z-Ebene ist die Akzeptanz des Systems im Flugwegunterschied durch das ionenoptische System in erster Näherung begrenzt auf einen maximalen Wegunterschied  $\Delta l$ =0,08 cm. Dies entspricht einer maximalen Ortsabweichung am Ende des Quadrupol-Dubletts und erzeugt einen Flugzeitunterschied von 0,05 ns, welcher vernachlässigbar ist. In der y-z-Ebene kann bei parallel stehenden Kohlenstofffolien, siehe Abb. 11 (a), ein rein geometrischer Wegunterschied der Randtrajektorien von  $\pm 0,88$  cm vorkommen, bezogen auf den Abstand der Sollbahn zum Folienrand des Stop-Detektors. Für <sup>53</sup>Mn mit einer Energie von 80 MeV, v=1,7 cm/ns, entspricht dies einer Flugzeitdifferenz von 0,5 ns. Die Intensitätsverteilung in Abhängigkeit der radialen Ortsabweichung der Ionen zur Sollbahnposition kann in guter Näherung als gaußverteilt mit Intensitäten am Folienrand unter 1% angenommen werden, vgl. Kapitel 1.6. Für die ToF-Konfiguration (a) resultiert eine Intensitätsverteilung mit einer Standardabweichung von  $\Omega_x$ = 0,17 ns. Aus der Entfaltung der Zeitverteilung mit dieser Intensitätsverteilung folgt eine Abweichung von 5% und kann deshalb nicht vernachlässigt werden. Stehen die Folien im 90°-Winkel zueinander, siehe Abb. 11 (b), so ist die mittlere Wegdifferenz der Randtrajektorien und die resultierende Flugzeitdifferenz zu vernachlässigen.

Ein weiterer nicht zu vernachlässigender Anteil der Messunsicherheit ist die intrinsische Zeitauflösung, die speziell für das hier verwendete ToF-System gemessen wurde, vgl. [72, 12], FWHM=246(1) ns, d.h.  $\Omega$ =104,5(4) ns. Sie ist abhängig von Flugzeitunterschieden der Sekundärelektronen, Zeitdelays in den MCP-Channels und elektronischem Rauschen. Sie ist unabhängig von den verwendeten Projektil-Ionen, der Ionenenergie und der Fluglänge [67].

Insgesamt kann die Energieverteilung als Summe der Quadrate der statistisch unabhängigen Effekte angegeben werden [68].

$$\Omega^{2}(A) = \Omega^{2}(\text{Int}) + \Omega^{2}(\text{Geo}) + \Omega^{2}(E) + \Omega^{2}(E_{\text{stragg}})$$
$$= \Omega^{2}(\text{no Foil}) + \Omega^{2}(E_{\text{stragg}})$$

Die Komposition  $\Omega^2$ (no Foil) kann direkt aus der Messung mit dem unabgebremsten Ionenstrahl gemessen werden.

Bei der Transformation der gemessenen Flugzeiten vom Zeitraum in den Energieraum wird eine Normalverteilung nicht auf eine Normalverteilung abgebildet, da die Transformation

$$t[\mathrm{ns}] \mapsto \sqrt{\frac{0,5181 \cdot 10^4 \cdot l^2[\mathrm{m}^2] \cdot m[\mathrm{u}]}{E[\mathrm{MeV}]}}$$

nur in erster Ordnung linear ist. Durch die Transformation werden niedrige Energien überschätzt und hohe Energien unterschätzt. Die Abweichungen sind klein und können vernachlässigt werden, da die Abweichung durch Tails aus der Messung zu niedrigen Energien deutlich größer sind. Diese erhöhen den Untergrund bei einer AMS-Messung deutlich, wenn die Flugzeit des Isobars kleiner ist als die des Radionuklids. Typische Zeitspektren mit Tails zu hohen Flugzeiten, d.h. niedrigen Energien, finden sich bei Vockenhuber et al. [37, 69, 71], Orlowski et al. [73], Pfeiffer [56], Palla et al. [74] und Feuerstein [12]. Ein genaueres Verständnis der Tails ermöglicht eine Untergrundkorrektur.

Verursacht wird die Verteilung durch statistisch seltene Stöße, bei denen hohe Energien übertragen werden, die nicht durch eine große Anzahl an Stößen mit geringem Energieübertrag im statistischen Mittel aufgehoben werden. Das Verhalten wird durch die Landau-Vavilov-Verteilung beschrieben [75].

$$p(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} exp\left(-\frac{1}{2}(x+e^{-x})\right)$$

Wird vor der Flugzeitmessung Energieverlust in einer Degrader-Folie produziert, so muss die gaußförmige Energieverlustverteilung mit der Landau-Vavilov-Verteilung gefaltet werden.

Tabelle 4.: Übersicht der Magnete, die von verschiedenen Forschungseinrichtungen im gasgefüllten Modus zur Isobarenunterdrückung betrieben werden. Sortiert nach der Sollbahnlänge im Bereich des magnetischen Flusses  $L_B$ . Das Verhältnis von Flugstrecke im Magnetfeld zu Flugstrecke im Gas variiert von 66% bei den Enge-Split-Pol-Spektrometern bis zu 92% beim CologneAMS 135°-Magneten.

Labor	Beschle	euniger	Ablenkwinkel bzw. Magnettyp	<i>ME</i> [amu∙MeV]	ρ [m]	<i>L<sub>B</sub></i> [m]	Literatur
CologneAMS	5 10 MV	FN	135°	61	0,9	2,12	[33]
MLL	14 MV	MP	135°	61	0,9	2,12	[24, 79]
MALT	5 MV	5UD	180°	12	0,63	1,98	[80, 81]
Uppsala	5 MV	15SDH-2	180°	14	0,6	1,88	[82, 83]
ETĤ	6 MV	EN	180°	25	0,6	1,88	[34, 84, 85]
ANSTO	10 MV	FN	160°	35	0,66	1,84	[86, 87]
CologneAMS	6 MV	Tandetron	м 120°	14	0,46	0,94	[12]
PRIME Lab	7,5 MV	FN	Н-Тур	im	Aufbau	1	[88]
ANL	9 MV	FN	Enge-Split-Pol	21	0,51	1,01	[5, 78]
ANU	15 MV	14UD	Enge-Split-Pol	21	0,51	1,01	[89 <i>,</i> 25]
NSRL	9+12 MV	ATLAS	Enge-Split-Pol	16	0,47	0,94	[90]

## 1.5.3. Gasgefüllter Magnet

Die Methode zur Isobarentrennung mit einem gasgefüllten Magneten wurde bereits 1958 von Fulmer und Cohen [76] sowie von Armbruster [77] zur Trennung von Spaltprodukten vorgeschlagen.

Bei dem Durchgang der Ionen durch ein Gas erfolgen ständig atomare Stöße, wodurch aus der Elektronenhülle des Projektils Elektronen entfernt oder hinzugefügt werden. Durch diese statistischen Umladungen entsteht ein mittlerer Ladungszustand  $q_0$ , der nach Sayer et al. [35] durch eine semiempirische Formel beschrieben werden kann.

$$q_0 = Z(1 - 1,08 \cdot \exp(-80, 1 \cdot Z^{-0,506} \cdot \beta^{0,996}))$$

Wenn die mittlere freie Weglänge kurz ist, kann die Bewegung der Ionen im Magnetfeld durch eine Kreisbahn zum mittleren Ladungszustand approximiert werden, wodurch die mittlere magnetische Steifigkeit proportional zur Masse *m* und der Kernladungszahl Z der Ionen und nahezu unabhängig von der Geschwindigkeitsverteilung der Ionen ist [78].

$$\langle B\rho\rangle = \frac{m\cdot \mathbf{v}}{q_0\cdot e} \approx \frac{m\cdot \mathbf{v}_0}{Z^{1/3}\cdot e}$$

Eine Untersuchung zur Abhängigkeit der magnetischen Steifigkeit von der Geschwindigkeitsverteilung der Ionen findet sich bei Knie [62]. Bei dem Durchgang durch das Gas resultiert aus Kleinwinkelstreuungen, Energieverlust und Energiestraggling eine Ionenstrahlaufweitung. Ist die Breite dieser Ortsverteilung proportional zur Strecke im Gas, so ist der ideale Ablenkwinkel 135°, siehe Knie [62]. Die Ionenoptik eines gasgefüllten Magneten ist in Kapitel 1.6 dargestellt.

Eine Vielzahl von Magneten werden für AMS-Messungen im gasgefüllten Mo-

dus verwendet, eine Auswahl ist in Tab. 4 zusammengefasst. Enge-Split-Pol-Spektrometer sind nicht ideal für die Isobarenunterdrückung im gasgefüllten Modus zu AMS-Messungen, da im Bereich zwischen den Polen ohne Magnetfeld nur Kleinwinkelstreuungen, Energieverlust und Energiestraggling ohne Isobarentrennung verursacht wird. Ausführliche ionenoptische Berechnungen zur Isobarentrennung mit einem Enge-Split-Pol-Magnetspektrometer finden sich bei Rehm et al. [91].

Bei den Energien, die von mittleren AMS-Anlagen mit 3-6 MV Terminalspannung erreicht werden, sind kürzere Sollbahnlängen erforderlich als bei größeren AMS-Anlagen. Der Kölner 135°-Magnet ist angelehnt an das Magnetspektrometer GAMS, dass aus dem C-förmigen Magneten des elektromagnetischen Isotopenseparator SIDONIE aufgebaut wurde [24, 79]. Die Auswahl des Ablenkwinkels wird in Kapitel 1.6 mit einer Simulation überprüft. Ausgewählt wurde für die Verwendung am FN-Tandembeschleuniger ein Magnet mit einem Ablenkradius von 900 mm und einer maximalen magnetischen Flussdichte von 1,25 T. Die Innenmaße der Vakuumkammer sind für eine hohe Transmission möglichst groß. Das Verhältnis von Flugstrecke im Magnetfeld zu Flugstrecke im Gas ist 92%, wenn das Eintrittsfenster an die Jochkante des Magneten eingebaut wird. Die große Innenhöhe der Vakuumkammer ermöglicht den Einbau eines kompakten Gasionisationsdetektors, vgl. [15], wodurch eine Flugstrecke im Gas ohne Magnetfeld ganz vermieden werden kann. Die technischen Daten des Kölner 135°-Magneten sind in Tab. 5 zusammengefasst.

Spezifikationen	
Polform	С
Magnetische Flussdichte	1,25 T
Ablenkradius	900 mm
Ablenkwinkel	135°
Eingangswinkel	0°
Ausgangswinkel	0°
Polabstand	50 mm
Polbreite	300 mm
Seitenprofil	scharf
Eingangsprofil	Rogowsky
Ausgangsprofil	Rogowsky
Radiale Feldhomogenität	$4 \cdot 10^{-4}$ Tm auf $\pm 50$ mm

Tabelle 5.: Technische Daten des Kölner 135°-Magneten. Die gesamten technischen Daten befinden sich im Anhang E in Tab. 31.

### 1.5.4. Gasionisationsdetektor

Die abschließende Detektion der Ionen erfolgt in einem Gasionisationsdetektor. Die Abbremsung erfolgt dabei, bis die Gesamtenergie im Detektorgas deponiert ist. Isobare unterscheiden sich dabei durch den Unterschied im differentiellen Energieverlust [4]. Durch die Wechselwirkung mit dem Gas werden Sekundärelektronen frei. Die Sammlung der Sekundärelektronen erfolgt durch ein elektrisches Feld senkrecht zur Sollbahn der Ionen. Zur positionsunabhängigen Signalproduktion wird das erzeugte Signal zwischen einem Frisch-Gitter und einer Anode ausgelesen [92], siehe Abb. 29 Kapitel 2.4. An anderen Forschungseinrichtungen werden verschiedene Detektoren mit unterschiedlicher Anzahl an  $\Delta$ E-Segmenten verwendet. Die einfachste Bauart ist ein  $\Delta$ E/E-Detektor mit 2 Anoden [93]. Im Unterschied dazu werden auch Gasionisationsdetektoren mit 7 Anoden verwendet, von denen 5 Anoden zur Winkelmessung segmentiert sind [94, 95].

Die Verwendung von Gasionisationsdetektoren hat einige Vorteile, aus welchem Grund sie auch in der Ion-Beam-Analysis (IBA) verwendet werden, wie z.B. die Elastic-Recoil-Detection-Analysis (ERDA) [95, 96]. Einer der größten Vorteile ist, dass die Gasionisationsdetektoren keinen Strahlenschäden unterliegen [34], außerdem sind sie einfach zu bedienen und sehr zuverlässig.

Die Auflösung, die mit Gasionisationsdetektoren erreicht werden können, sind abhängig von der Statistik der Ionisation, dem Energieverlust, dem Energiestraggling, dem Winkelstraggling, der Diffusion, der Rekombination, dem Detektorgas, dem Einfluss des Eintrittsfensters, der Anodensegmentierung, der Geometrie, der Elektronik und der Signalanalyse.

Ein Gasionisationsdetektor, der in dieser Arbeit verwendet wurde, ist angelehnt an den  $\Delta$ E/E-Detektor der ETH-Zürich [97, 98, 99], der mit am IKP Köln entwickelten Vorverstärkern betrieben wird [100, 101], vgl. Abb. 29. Die Anodensegmentierung wurde über Simulationen mit SRIM für die Isobarentrennung bei (<sup>53</sup>Mn/ <sup>55</sup>Mn)-Messungen optimiert, vgl. Abb. 12 (links). Berechnet wurde der differentielle Energieverlust (dE/dx) in 130 mBar Isobutan von <sup>53</sup>Mn und <sup>53</sup>Cr mit einer Anfangsenergie von 80 MeV.

Es resultiert ein  $\Delta E/E$ -Spektrum, in dem die Isobare getrennt werden können. Das Maß für die Qualität der Trennung ist das Isobarentrennungsvermögen und der Isobarentrennungsfaktor, da durch Streuung der Primärionen im Detektorgas Untergrund erzeugt wird. Die dominierenden Tails bei den (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Messungen sind in Abb. 12 (rechts) dargestellt. Tails zu niedriger Energie auf der zweiten Anode mit geringerer Gesamtenergie (a) entstehen durch die Streuung von Primärionen vor oder im Bereich der ersten Anode, ohne dass die Gesamtenergie im Bereich der Anoden deponiert wird. Die Tails zu niedriger Energie auf der zweiten Anode mit erhaltener Gesamtenergie (b) entstehen durch die Streuung von Primärionen im Bereich der ersten Anode, so dass die Gesamtenergie im Bereich der Anode mit erhaltener Gesamtenergie (b) entstehen durch die Streuung von Primärionen im Bereich der ersten Anode, so dass die Gesamtenergie im Bereich der Anoden deponiert wird. Eine ausführliche Beschreibung findet sich bei Ophel et al. [102] und bei Zoppie [34]. Die Position im  $\Delta E/E$ -Spektrum des Isobars mit höherem Z ist durch den Energieverlust im Eintrittsfenster reduziert, da dort ein höherer Energieverlust stattfindet,  $E=E_{Sum}-E_{Foil}$ .

Ein weiterer Gasionisationsdetektortyp, der in dieser Arbeit verwendet wurde,



Abbildung 12.: Links: Differentieller Energieverlust im Detektorgas für <sup>53</sup>Mn (schwarz) und <sup>53</sup>Cr (rot) zur Optimierung der Anodensegmentierung über Simulationen mit SRIM. Rechts: Prinzipielle Darstellung des  $\Delta E/E$ -Spektrums. Tails zu niedriger Energie auf der zweiten Anode mit geringerer Gesamtenergie (a) entstehen durch die Streuung von Primärionen vor oder im Bereich der ersten Anode, ohne dass die Gesamtenergie im Bereich der Anoden deponiert wird. Tails zu niedriger Energie auf der zweiten Anode mit erhaltener Gesamtenergie (b) entstehen durch die Streuung von Primärionen im Bereich der ersten Anode, so dass die Gesamtenergie im Bereich der Anoden deponiert wird. Die Position des Isobars mit höherem Z ist durch den Energieverlust im Eintrittsfenster reduziert.

ist ein Bragg-Detektor, der an den brasilianischen Bragg-Detektor angelehnt ist [103, 104], welcher hier mit einem 4-Kanal CAEN DT5724-21 Desktop-Waveform-Digitizer betrieben wird, siehe Abb. 30 in Kapitel 2.4.3. Die Sekundärelektronen werden bei diesem Gasionisationsdetektortyp parallel zur Flugrichtung der Ionen durch ein elektrisches Feld gesammelt. Dabei können Isobare über den Vergleich des Energieverlustes des Bragg-Maximums mit der Gesamtenergie unterschieden werden. Die Messung erfolgt über die parallele Verarbeitung des Energiesignals mit zwei verschiedenen Integrationszeiten, "Shaping-Time" genannt. Gemessen wird die Sammlung aller Ladungsträger hinter einem Frisch-Gitter. Die schnelle Sammlung des Signals des Bragg-Maximums erfolgt in 0,08 µs bis 0,5 µs. Die Sammlung des Signals der Gesamtenergie erfolgt in >6 µs. Zu Gunsten der Auflösung wurde sich gegen den Aufbau eines Bragg-Detektors ohne Frisch-Gitter entschieden, wie er bei Müller et al. zu finden ist [105]. Diese Art von Gasionisationsdetektor wird hauptsächlich zur Isobarentrennung von leichten Radionukliden eingesetzt. Für mittelschwere Radionuklide, wie z.B. bei der Trennung von <sup>41</sup>K von <sup>41</sup>Ca, zeigten sie jedoch auch gute Ergebnisse, siehe Li et al. [106]. Da die Energiespektren der ersten Tests zu den zwei Shaping-Time Messungen keine Tails in Richtung Ionen mit höherer Kernladungszahl aufwiesen, ist die Messung mit diesem Detektor besonders für die (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Messung auf Grund des geringeren Untergrunds interessant, siehe Kapitel 3.7.2.

# 1.5.5. Interferenzen

Eine hohe Unterdrückung des ionischen Untergrunds nach dem Tandembeschleuniger wird durch die Filterung mit dem Analysiermagneten, (p/q)- Filter, und dem ESA, (E/q)-Filter, ermöglicht. Ebenso werden Wien-Filter verwendet, die nach der Geschwindigkeit selektieren, (E/q)/(M/q)-Filter [58, 107]. Die hohe Untergrundreduktion folgt aus der hohen Auflösung der Systeme. Ionen bestimmter Masse, Ladung und Energie können diese Filter ebenso passieren wie das gewünschte Isotop, wenn bestimmte Bedingungen von (p/q) und (E/q) erfüllt sind. Diese werden Interferenzen genannt. Ausgenutzt werden diese Eigenschaften bei der Verwendung von Pilotstrahlen, mit denen das System optimiert werden kann. Sie weisen (M/q)-Differenzen zum Ionenstrahl des Radionuklids im Promillebereich auf. Ein Beispiel für die <sup>60</sup>Fe<sup>10+</sup> Messung ist <sup>54</sup>Fe<sup>9+</sup> mit einer relativen (M/q)-Differenz von 3,1‰. Weitere Beispiele sind bei Steinhof [108] zu finden.

Beispiele für Interferenzen bei AMS-Messungen gibt es viele, von leichten Ionen wie  ${}^{14}C^{2+}$ , dort interferiert  ${}^{7}Li^{+}$ , siehe Nadeau et al. [109], bis zu den Actiniden wie  ${}^{243}Am^{3+}$ , dort interferiert  ${}^{162}Dy^{2+}$  und  ${}^{81}Br^{+}$ , siehe Cornett et al. [110]. Ladungszustandsänderungen in den Beschleunigungsröhren sind bei Steier [111] und Vockenhuber [37] beschrieben, die zu einer kontinuierlichen Energieverteilung des Untergrunds nach dem Beschleuniger führen. Molekulare Interferenzen sind bei Xu et al. [112] und Matteson et al. [36] beschrieben.

### Interferenzen durch die Degrader-Folie

Durch die Benutzung der Degrader-Folie wird die diskrete (M/q)-Filterung des Massenspektrometers, bestehend aus (p/q)- und (E/q)-Filter, aufgehoben. Die Bedingung

$$\frac{E}{q} = \frac{ME}{q^2} \left(\frac{M}{q}\right)^{-1}$$

muss um den Energieverlust  $E_{\text{loss}}$  und zusätzliche Ladungszustände (*q*+*n*) erweitert werden,  $E' = E - E_{\text{loss}}$ .

$$\frac{E'}{q} = \frac{ME}{q^2} \left(\frac{M}{q}\right)^{-1} - \frac{E_{loss}}{q}$$

Bei der Messung wird der ESA auf das resultierende (E'/q) Verhältnis gestellt, welches durch die hohen Ladungszustände deutlich von (E/q) abweicht. Durch die Energie- und Ladungszustandsänderungen der Ionen in der Degrader-Folie werden weitere Kombinationen aus Energie und Ladungszustand möglich, die sonst nicht transportiert würden.

Die Darstellung des Auflösungsvermögens von Kilius et al. [113] gibt einen guten Einblick in die Zusammenhänge der möglichen Interferenzen. Diese Darstellung wird im Folgenden verwendet für die Berechnung der (E/q)-Interferenzen



Abbildung 13.: (E/q)-Interferenzen bei Benutzung einer Degrader-Folie zwischen Analysiermagnet und ESA. Die (M/q)-Auflösung des Analysiermagneten ist reziprok proportional zu (E/q) mit dem Proportionalitätsfaktor (ME/q<sup>2</sup>). Hier dargestellt für 100 MeV <sup>53</sup>Mn im 10<sup>+</sup> Ladungszustand. Die (E/q)-Auflösung des ESAs ist unabhängig von (M/q), hier gezeigt ist 84,8 MeV im 18<sup>+</sup> Ladungszustand. In der linken Aufschlüsselung sind ausgewählte (E/q)-Interferenzen angegeben. Weitere Ladungszustände werden durch den Analysiermagneten gefiltert. Die Achse der gezeigten Ladungszustände vor der Selektion um ±1 (rot), können passende (ME/q<sup>2</sup>)-Werte resultieren, um zu Interferenzen zu führen. Der Energieverlust in der Degrader-Folie für <sup>53</sup>Mn und <sup>53</sup>Cr ist durch blaue Pfeile wiedergegeben. Eine wesentliche (E/q)-Interferenz erfolgt aus dem 8<sup>+</sup> Ladungszustand durch eine Änderung zum 9<sup>+</sup> Ladungszustand. Geringe Untergrundbeiträge sind vom 12<sup>+</sup> Ladungszustand zu erwarten, da das (E/q) nur knapp erreicht wird. Weiterer Untergrund wird durch Streuung erzeugt (grün).

bei der Benutzung einer Degrader-Folie zwischen Analysiermagnet und ESA.

Die (M/q)-Auflösung des Analysiermagneten ist reziprok proportional zu (E/q) mit dem Proportionalitätsfaktor (ME/q<sup>2</sup>). Wird (E/q) gegen (M/q) aufgetragen, so kann die Akzeptanz des (p/q)-Filters als Bereich um den funktionalen Verlauf der Funktion (ME/q<sup>2</sup>) angegeben werden, siehe Abb. 13. Gezeigt ist ein Beispiel für die Messung von <sup>53</sup>Mn im 10<sup>+</sup> Ladungszustand bei 100 MeV bei der Verwendung einer 1,9 µm SiN-Degrader-Folie. Die (E/q)-Auflösung des ESAs ist unabhängig von (M/q). Die Akzeptanz des ESAs ist ebenfalls als Bereich um den funktionalen Zusammenhang (E/q) angegeben, dieser ist dargestellt zu <sup>53</sup>Mn mit 84,8 MeV im 18<sup>+</sup> Ladungszustand mit (E/q)=4,7. (E/q)-Interferenzen können aus den stark populierten Ladungszuständen entstehen, ausgehend vom Moleküleinschuss von <sup>53</sup>MnO<sup>-</sup> bei einer Terminalspannung von 9,28 MV. In der linken Aufschlüsselung des (E/q) sind ausgewählte Interferenzen angegeben. Die Achse der gezeigten La-

dungszustände ist durch die Dissoziation von <sup>53</sup>MnO<sup>-</sup> geneigt.

Ändern sich durch Wechselwirkungen mit dem Restgas die Ladungszustände nach dem Tandembeschleuniger, so können passende (ME/q<sup>2</sup>)-Werte resultieren, die vom Analysiermagneten nicht gefiltert werden. Die Änderungen sind mit roten Pfeilen entsprechend einer Änderung des Ladungszustandes um  $\pm 1$  eingezeichnet. Diese ionischen Komponenten können ohne Energieverlust den ESA nicht passieren. Ändert sich die Energie in der Degrader-Folie, so können passende (E'/q)-Werte entstehen. Für <sup>53</sup>Cr im 8<sup>+</sup> Ladungszustand ergibt eine Änderung in den 9<sup>+</sup> Ladungszustand die richtige magnetische Steifigkeit, um durch den Analysiermagneten transportiert zu werden. Der Energieverlust des <sup>53</sup>Cr der Gesamtenergie 81,4 MeV ist in der Degrader-Folie 15,423 MeV, wodurch ein (E'/q) von 4,71 resultiert. Dies kann als Interferenz, 65,9 MeV im 14<sup>+</sup>, vom ESA nicht gefiltert werden. Von der <sup>53</sup>Cr Komponente im 12<sup>+</sup> Ladungszustand ist nur ein geringer Beitrag zu erwarten, da ein passendes (M/q) nur knapp erreicht wird. Die Stärke der Komponenten durch Änderung des Ladungszustandes ist bei Kilius et al. beschrieben [114].

Der Untergrund aus anderen atomaren Masseneinheiten ist sehr umfangreich, da eine Vielzahl an Massen, Energien und Ladungszuständen berücksichtigt werden müssen. Ein weiterer Untergrund kann durch Streuungen erzeugt werden. Der dazu nötige Energieverlust ist mit grünen Pfeilen dargestellt.

# Molekulare Fragment-Interferenzen

 $^{52}$ Cr kann als  $^{52}$ CrOH<sup>-</sup> Molekül simultan mit  $^{53}$ CrO<sup>-</sup> durch den Injektormagnet transportiert werden. Die Energie des 10<sup>+</sup> Ladungszustandes nach dem Tandembeschleuniger ist mit 99,968 MeV verschieden zu den 100 MeV  $^{53}$ Mn im 10<sup>+</sup> Ladungszustand. Durch die Akzeptanz des Systems ist ein Eintreffen in den Detektor unwahrscheinlich, da die magnetischen Steifigkeiten unterschiedlich sind, 1,0481 Tm für  $^{53}$ Mn zu 1,0375 Tm für  $^{52}$ Cr. Sollten die  $^{52}$ Cr Ionen durch Streuung oder eine Ladungszustandsänderung den Analysiermagnet passieren, so wird durch die Degrader-Folie ein Durchgang durch den ESA ermöglicht. Bei einem zugehörigen Energieverlust von 15,18 MeV resultiert ein (E/q)-Wert von 4,7. Dieser stimmt mit dem (E/q)-Wert von  $^{53}$ Mn auf 1,2‰ überein und kann nicht vom ESA aufgelöst werden. Molekulare Fragment-Interferenzen, die das Massenspektrometer passieren können, sind von Kilius et al. [113] beschrieben worden.

Eine Möglichkeit der Entstehung eines Sauerstoffuntergrunds ist, dass <sup>16</sup>O nach dem Molekülaufbruch im 3<sup>+</sup> Ladungszustand den Analysiermagnet passiert. Es hat nicht die gleiche magnetische Steifigkeit mit 1,052 Tm und kann nur durch Streuung oder eine Ladungszustandsänderung zur Degrader-Folie kommen. Bei einem Energieverlust von 1,79 MeV in der Degrader-Folie kann es den Detektor erreichen.

Га	abelle 6.: Energien der molekularen (MO) X-Ray Emissionslinien nach <sup>a</sup> Hölzer et al. [117],
	<sup>b</sup> Tompson et al. [118] und <sup>c</sup> Crawford et al. [119]. Die emittierten X-Ray Energien der
	Ionen im mittleren Ladungszustand in der Folie sind durch die diabatische Änderung
	höher als der Literaturwert, vgl. Taulbjerg et al. [120]. Yield der $K_{\beta}$ Energien relativ zu
	den $K_{\alpha}$ Energien, respektive $L_{\beta}$ zu $L_{\alpha}$ , nach Krause [121]. $M_{\alpha}$ korreliert nicht mit $M_{\beta}$ , da
	nicht die gleichen Orbitale beteiligt sind.

Element	Ζ	Linie	Energie [eV]	Yield $\alpha$ zu $\beta$
Si	14	Kα	1.739,98 <sup>b</sup>	100
		$K_{\beta}$	1.835,94 <sup>b</sup>	2
Cr	24	$K'_{\alpha}$	5.414,81 <sup>a</sup>	100
		$K_{\beta}$	5.946,82 <sup>a</sup>	15
Mn	25	$K_{\alpha}$	5.898,80 <sup>a</sup>	100
		$K_{\beta}$	6.490,18 <sup>a</sup>	17
Fe	26	$K_{\alpha}$	6.404,01 <sup>a</sup>	100
		$K_{\beta}$	7.058,18 <sup>a</sup>	17
Ni	28	$K_{\alpha}$	7.478,26 <sup>a</sup>	100
		$K_{\beta}$	8.264,78 <sup>a</sup>	17
Au	79	$K_{\alpha}$	68.803,7 <sup>b</sup>	100
		$K_{\beta}$	77.984 <sup>b</sup>	23
		Ĺα	9.713,3 <sup>b</sup>	100
		$L_{\beta}$	11.442,3 <sup>b</sup>	67
		$\dot{M_{lpha}}$	2.122,9 <sup>b</sup>	100
		$M_{eta}$	2.220 <sup>c</sup>	100

# 1.5.6. Projektil X-Ray AMS

Eine weitere Methode zur Isobarentrennung ist die "Projektil X-Ray AMS"-Messung (PXAMS), bei der die charakteristische Röntgenstrahlung der Projektil-Ionen gemessen wird, die während des Abbremsvorgangs in einem Medium entsendet wird [115]. Sie ähnelt daher sehr der "Particle Induced X-Ray Emission" (PIXE) [116]. Durch die Entstehung der X-Rays beim Elektronenübergang in der Atomhülle ist eine Identifikation nach den Ordnungszahlen der Elemente über die K-, Lund M-Linien möglich.

Erfolgreiche PXAMS-Messungen wurden für <sup>41</sup>Ca von Freeman et al. [122], <sup>59</sup>Ni von Artigalas et al. [123], <sup>63</sup>Ni von Roberts et al. [124], <sup>64</sup>Cu und <sup>79</sup>Se von He et al. [125] und <sup>182</sup>Hf von Winkler et al. [126, 127] durchgeführt. Wirkungsquerschnitte für die K X-Ray Produktion sind bei Meyerhof et al. [115] zu finden. Wirkungsquerschnitte für die L X-Ray Produktion sind bei Winkler et al. [127] zu finden. Die Abhängigkeit der Wirkungsquerschnitte vom Targetmaterial findet sich bei Taulbjerg et al. [120]. Dort ist auch die Änderung der X-Ray Energien der Ionen durch die diabatische Änderung der Energieniveaus der molekularen Orbilate (MO), hervorgerufen durch den mittleren Ladungszustand, umfassend beschrieben. Diese Energien werden im weiteren mit  $K^*$  und  $L^*$  bezeichnet. Literaturwerte der MO Energien, die für diese Arbeit von Bedeutung sind, befinden sich in Tabelle 6, nach

Hölzer et al. [117], Tompson et al. [118] und Crawford et al. [119]. Dort befinden sich auch die X-Ray Yields der  $K_{\beta}$  Energien relativ zu den  $K_{\alpha}$  Energien, respektive  $L_{\beta}$  zu  $L_{\alpha}$ , zusammengefasst nach Krause [121]. Die Energien der Übergänge  $M_{\alpha}$ und  $M_{\beta}$  sind nicht korreliert, da nicht die gleichen Orbitale beteiligt sind.  $M_{\alpha}$  ist der Übergang  $m_V \rightarrow n_{VII}$  und  $M_{\beta}$  ist der Übergang  $m_{IV} \rightarrow n_{VI}$ .

Für die Bestimmung von Isobarentrennungsvermögen bei Messungen von Radionukliden mit höherer Ordnungszahl im Vergleich zum Isobar  $Z_R > Z_I$  können die Übergänge  $K_\beta$ ,  $L_\beta$ ,  $M_\beta$ ,  $K_\gamma$ ,  $L_\gamma$  und  $M_\gamma$  einen Untergrund zur Radionuklidmessung erzeugen. Damit eine Untergrundkorrektur möglich ist, müssen die relative Intensität der Übergänge, die Energieniveaus im mittleren Ladungszustand und die relativen Halbwertsbreiten bekannt sein.

Zum Test des erreichbaren mittleren Isobarentrennungsvermögens wurde hier mit einem "Silicon Drift Detector" (SDD), XFlash 2001 von Röntec [128], ein einfacher Testaufbau realisiert, der zusätzlich die Bestimmung des X-Ray Yields ermöglichen sollte. Der Aufbau und die Messergebnisse sind in Kapitel 3.8 auf Seite 87 zu finden.

# 1.6. Ionenoptik

Die Beschreibung der Bewegung von Ionen in elektrischen und magnetischen Feldern in linearer Näherung bezüglich einer Sollbahn wird lineare Ionenoptik genannt. Die Relativkoordinaten der einzelnen Teilchen sind in einem Teilchenvektor zusammengefasst.

$$\mathbf{X}_{i}(z) = (x, \alpha, y, \beta, \delta_{E}, \delta_{M})_{i}^{T} \Big|_{z}$$

Die Gesamtheit der Teilchen im Strahl wird durch die Phasenraumellipse  $\sigma(z)$  beschrieben. Die Dichteverteilung der Menge der Teilchenvektoren entlang der Sollbahn beschreibt das System vollständig. Wird von einer gaußverteilten Dichteverteilung ausgegangen, so gilt für die 1 $\sigma$ -Emittanz

$$\mathbf{X}^T \sigma(0) \mathbf{X} = 1$$

Die Phasenraumellipse wird mit Transfermatrizen  $T_i$  entlang der Sollbahn von einem Punkt a zu einem Punkt b transformiert.

$$\sigma(b) = T_b \cdot \sigma(a) \cdot T_b^T$$

Die Transformation erfolgt durch das Produkt der Einzeltransfermatrizen entlang der stückweisen Intervalle  $z_m = [z_{m-1}, z_m)$  der Sollbahn, mit  $z_{m-1} \le z_m$  und  $z_m \in \mathbb{R}$ ,  $m \in \mathbb{N}$ .

$$T_z = T_{z_1} \cdot T_{z_2} \cdot \ldots \cdot T_{z_n}$$
,  $z_1 \leq z_2 \leq \ldots \leq z_n = z \leq \ldots \leq z_m$ 



Abbildung 14.: Gegenüberstellung der Designs des Hochenergie-Massenspektrometers in chronologischer Reihenfolge. Erstes Design: (a) die Sektionen 90°-Analysiermagnet II und ESA erfüllen die Bedingung der Punkt-zu-Punkt Abbildung. Die zugehörige Ionenoptik ist in [40] zu finden. Zweites Design: (b) Die Sektion ESA erfüllt die Bedingung der doppelt teleskopischen Abbildung ohne innere Symmetrie [33]. Aktuelles Design: (c) Die Sektion ToF-System erfüllt die Bedingung der Punkt-zu-Punkt Abbildung bis zum 135°-Magneten für den Betrieb im gasgefüllten Modus.

Bei der Darstellung des Ionenstrahls mit Programmen wie ITAP von Youchison und Nahemow [129], S<sup>3</sup>M von Pavlovič und Strašík [130], COSY INFINITY von Makino und Berz [131], TRANSPORT von Brown et al. [132] und LIMIOPTIC2 von Stolz [133] wird das Strahlenbündel  $\mathcal{D}(E, m)$  dargestellt. Es ist definiert durch eine begrenzte Anzahl an Teilchentrajektorien  $\gamma_i(z)$ :

$$\mathcal{D}(E,m) = \{ \gamma_i(z) \mid \gamma_i(z) = T_z \cdot \mathbf{X}_i(0) , \mathbf{X}_i(0) \in \sigma(0), i = 1, ..., n \}$$

Die Transfermatrizen für die im Folgenden verwendeten ionenoptischen Komponenten (Driftstrecke, Beschleunigungsstrecke, Einzellinse, Quadrupol, ESA, Dipolmagnet, Kantenfokussierung), sind bei Wollnik [134] zu finden. Die Ionenoptik des Injektors ist in [135, 40] zu finden. Für die Darstellung der Ionenoptik wird hier im weiteren LIMIOPTIC2 verwendet.

Bei einem ionenoptischen System kann die Phasenraumellipse bei der Waistzu-Waist Abbildung erhalten bleiben, indem nur teleskopische Abbildungseigenschaften genutzt werden. Dies wird durch die Einhaltung von Punkt-zu-Punkt ( $T_{12}=T_{34}=0$ ) und Parallel-zu-Parallel ( $T_{21}=T_{43}=0$ ) Abbildungen ermöglicht [136].

# 1.6.1. Hochenergie-Massenspektrometer

Für die Planung des Hochenergie-Massenspektrometers kann das System in die ionenoptischen Einzelsektionen 90°-Analysiermagnet II, Quadrupol-Triplett, ESA, ToF-System und 135°-Magnet unterteilt werden. Es mussten die Planungsvorgaben und die technischen Daten der Hauptkomponenten berücksichtigt werden, siehe Tab. 7.

Die Planungsvorgaben sind:

- Achromatizität
- S-förmiges Hochenergie-Massenspektrometer
- Wandöffnung zwischen Beschleuniger- und Strahlrohrhalle
- Abstand 90°-Analysiermagnet II und Quadrupol-Triplett
- Abstand zu Strahlrohr L15
- ToF-Länge 4 m
- Deckenlasten

Das erste Design des Hochenergie-Massenspektrometers, siehe Abb. 14a, berücksichtigt die Planungsvorgaben, die Forderung nach einer Punkt-zu-Punkt Abbildung des 90°-Analysiermagneten II und der ESA-Sektion. Die Positionierung des Quadrupol-Dubletts in der ToF-Sektion folgt aus den Simulationen der Isobarenunterdrückung mit Degrader-Folie und Time-of-Flight-System. Der Aufbau des 135°-Magneten war in dieser Planungsphase noch nicht vorgesehen. Die gesamte Ionenoptik dieses Designs ist in [40] zu finden.

Das zweite Design, siehe Abb. 14b, ermöglicht durch die Forderung einer doppelt teleskopischen Abbildung ohne innere Symmetrie der ESA-Sektion eine Transmissionserhöhung von 25% im Vergleich zum ersten Design. Berücksichtigt werden dabei weiterhin die Planungsvorgaben und die Forderung nach einer Punktzu-Punkt Abbildung des 90°-Analysiermagneten II [33]. Die Simulationen der Isobarenunterdrückung mit Degrader-Folie und ESA ist in Abb. 17 und mit Degrader-Folie und ToF-System in Abb. 18 dargestellt.

Das aktuelle Design, siehe Abb. 14c, beinhaltet einen 135°-Magneten, der zur Isobarenunterdrückung im gasgefüllten Modus betrieben wird. Zur Steigerung der Transmission bei Messungen ohne Degrader-Folie ist hier die Forderung nach einer Punkt-zu-Punkt Abbildung in der ToF-Sektion erfüllt. Berücksichtigt werden dabei die Planungsvorgaben, die Forderung nach einer Punkt-zu-Punkt Abbildung des 90°-Analysiermagneten II, die Forderung einer doppelt teleskopischen Abbildung ohne innere Symmetrie des ESAs. Die Ionenoptik ist in Abb. 15 dargestellt. Die Abstände der ionenoptischen Elemente sowie die Sollbahnpositionen sind in Tabelle 8 zusammengefasst.

Eine Verbesserung der Ionenoptik kann durch die Forderung einer teleskopischen Abbildung der ToF-Sektion erreicht werden. Dieses wird durch die Verwen-

NE-Aufbau	
Elektrostatischer Analysierer	Sphärisch, Ablenkwinkel 90°, Radius 435 mm, Plattenab- stand 43,5 mm, Plattenhöhe 160 mm
Bouncer-Magnet	Doppelt fokussierend, Korrekturen zweiter Ordnung, Ab- lenkwinkel 90°, Radius 435 mm, Gap-Höhe 60 mm
Vorbeschleunigung	Maximale Potentialdifferenz 80 kV, Röhrenlänge 385 mm
FN-Tandembeschleuniger	
Terminalspannung	Max. 10 MV, vier Beschleunigungsröhren je 2,48 m, Folienstripper
HE-Aufbau	
Analysiermagnet II	Doppelt fokussierend, Ablenkwinkel 90°, Radius 1100 mm, Gap-Höhe 30 mm, Massen-Energie-Produkt 124 amu·MeV
Elektrostatischer Analysierer	Einfach fokussierend, Ablenkwinkel 30°, Radius 3500 mm, Plattenabstand 30 mm, Plattenhöhe 175 mm, maximales elektrisches Feld 6,66 MV/m
Time-of-Flight-System	4 m Flugstrecke, Tilted-Foil-Geometrie, intrinsische Zeitauf- lösung 246 ps
Gasgefüllter Magnet	Einfach fokussierend, Ablenkwinkel 135°, Radius 900 mm, Gap-Breite 300 mm, Gap-Höhe 50 mm, Massen-Energie-Pro- dukt 61 amu·MeV

Tabelle 7.: Technische Daten der ionenoptischen Hauptkomponenten.

dung eines Quadrupol-Tripletts oder durch den symmetrischen Aufbau von zwei Quadrupol-Dubletts möglich.

# Magnetische Steifigkeitsdispersion

Die magnetische Steifigkeitsdispersion  $D_M$  in der dispersiven Ebene des 90°-Analysiermagneten II ist durch die doppelt fokussierende monochromatische Eigenschaft festgelegt, vgl. [134].

$$D_M = 4 \cdot \rho = 4, 4 m = 4, 4 \frac{mm}{\%}$$

Die senkrechte Komponente der magnetischen Flussdichte *B* zur magnetischen Steifigkeit  $\chi_M$  ist:

$$B = \frac{\chi_M}{\rho} = \sqrt{\frac{2 \cdot m \cdot E_I}{q^2 \cdot \rho^2}}$$

# **Elektrische Steifigkeitsdispersion**

Die elektrische Steifigkeitsdispersion  $D_E$  des ESAs in der dispersiven Ebene ist:

$$D_E = \rho(1 - \cos \Phi) = 0,47 \ \frac{\text{mm}}{\%_0}$$



Sektion	Komponente	Abstand [m]	Sollbahn [m]	Sektion	Komponente	Abstand [m]	Sollbahn [m]
	Sputtertarget	00'0	00'0		Waist	5,38	32,25
	Linse	0,21	0,21	HEN	Magnet-Anfang	2,20	34,45
	Waist	0,18	0,39		Magnet-Ende	1,72	36,17
	ESA-Anfang	0,43	0,82		Waist	2,20	38,37
Injektor	ESA-Ende	0,68	1,50		QT-Anfang	3,18	41,55
	Waist	0,44	1,94	HEQ	QT-Ende	0,87	42,42
	Magnet-Anfang	0,87	2,81		Waist	3,15	45,57
	Magnet-Ende	0,68	3,49		QD-Anfang	0,78	46,35
	Waist	0,87	4,36		QD-Ende	0,60	46,95
	VB-Anfang	0,66	5,02		ESA-Anfang	0,20	47,15
	VB-Ende	0,34	5,36	HEE	ESA-Ende	1,83	48,98
	QT-Anfang	0,61	5,97		QD-Anfang	0,20	49,18
NIF	QT-Ende	0,61	6,58		QD-Ende	0,60	49,78
	Linse I	3,75	10,33		Waist	0,78	50,56
	Waist	1,30	11,63		ToF-Start-Detektor	0,30	50,86
	Linse II	1,02	12,65	Тон	QD-Anfang	2,00	52,86
	Linse III	0,81	13,46	IOI	QD-Ende	0,73	53,59
٩UU	Tank-Anfang	0,37	13,83		ToF-Stop-Detektor	1,23	54,82
	Tank-Ende	11,49	25,32		Magnet Flansch	0,48	55,30
НЕ	QD-Anfang	06'0	26,22	GFM	Magnet Eingangsfenster	0,20	55,50
	OD-Ende	0,65	26,87		Magnet Ausgangsfenster	2,04	57,54



Abbildung 16.: Achromatizität des Hochenergie-Massenspektrometers. Dargestellt sind drei Ionenstrahlbündel  $\mathcal{D}(E_1, m_1)$  und  $\mathcal{D}(\pm E_2, m_2)$  mit  $E_1$ - $E_2$ =1,6% und  $m_1$ = $m_2$ .

Für ein System von ESA und Driftstrecke ohne Linsenwirkung wird die Energiedispersion vergrößert.

$$D_E = \rho(1 - \cos \Phi) + L \sin \Phi$$

Durch die doppelt teleskopische Abbildung des ESAs wird die Energiedispersion reduziert. Die Energiedispersion ist bei teleskopischen Abbildungen mit und ohne innere Symmetrie gleich.

Die senkrechte Komponente der elektrischen Feldstärke  $\vec{E}$  zur elektrischen Steifigkeit  $\chi_E$  ist:

$$|\vec{E}| = \frac{\chi_E}{\rho} = \frac{2 \cdot E_I}{q \cdot \rho}$$

### Achromatizität

Das System ist achromatisch, wenn die Schnittflächen  $A_B$  und  $A_E$  der Ionenstrahlbündel in der dispersiven Ebene in den Sektorfeldern das Verhältnis

$$\frac{A_B}{2 \cdot \rho_{B_0}} = \frac{A_E}{\rho_{E_0}}$$

haben. Ist dies nicht der Fall, ist das System energiedispersiv. Bei der Verwendung einer Degrader-Folie vor dem ESA mit einem Durchmesser von 8 mm ist die Achromatizität des Systems auf 1,8‰ beschränkt. Das aktuelle Design des Hochenergie-Massenspektrometers ist achromatisch. In Abb. 16 sind drei Ionenstrahlbündel dargestellt  $\mathcal{D}(E_1, m_1)$  und  $\mathcal{D}(\pm E_2, m_2)$  mit  $E_1$ - $E_2$ =1,6‰ und  $m_1$ = $m_2$ .

# Ionenoptik der Isobarentrennung mit Degrader-Folie und ESA

Für die Bestimmung der Gesamteffizienz der Isobarentrennung mit Degrader-Folie und ESA muss die Transmission bestimmt werden, die durch das ionenop-



Abbildung 17.: Ionenoptik der Isobarentrennung mit Degrader-Folie und ESA. Dargestellt sind zwei Ionenstrahlbündel (schwarz)  $\mathcal{D}({}^{54}Fe, E_0)$  und (rot)  $\mathcal{D}({}^{54}Cr, E_0 + 44\%)$ , die bei der relativen Sollbahnposition *L*=0 durch eine 4 µm Degrader-Folie von einer Anfangsenergie von 100 MeV abgebremst wurden. In der Degrader-Folie wird ein Energiestraggling  $\Omega$ =10% und ein Winkelstraggling  $\Omega_{\theta}$ =5 mrad erzeugt. Es resultiert eine <sup>54</sup>Fe Transmission von 98% bei einem Bündeldurchmesser von 7,7 mm an der x-Schlitzposition.

tische System erreicht werden kann. Dabei ist der Energieverlust, das Energiestraggling und das Winkelstraggling zu berücksichtigen. Der Hauptgrund für die Verwendung von LIMIOPTIC2 für die Ionenoptikrechnungen war die In-Haus-Entwicklung des Programms, so konnten Funktionen für Degrader-Folien implementiert werden, die es ermöglichen, an gewählten Sollbahnpositionen des Strahlengangs einen Energieverlust, ein Energiestraggling und ein Winkelstraggling zu erzeugen. Mit den Werten  $\Delta E=44\%$ ,  $\Omega=10\%$  und  $\Omega_{\theta}=5$  mrad, für die Isotope <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr mit einer 4 µm Degrader-Folie und 100 MeV Ionen, siehe Kapitel 1.5, folgt eine <sup>54</sup>Fe Transmission von 98% bei einem Bündeldurchmesser von 7,7 mm an der x-Schlitzposition, siehe Abb. 17. Der Waist hinter der x-Schlitzposition entsteht durch das Abschneiden der Randtrajektorien. An dieser Sollbahnposition ist das System nicht energiedispersiv.

Die Simulationen zeigen, dass Schlitze in der dispersiven Ebene vor dem Eingang in den ESA das Isobar ohne hohe Transmissionsverluste unterdrücken, siehe Abb. 17. Die gaußförmigen Dichteverteilungen der Strahlenbündel werden dabei zweiseitig beschnitten, bevor die Energieverteilungen in räumliche Verteilungen transformiert werden, wodurch der isobarische Untergrund des Radionuklids unterdrückt wird. Die Transmissionsverluste sind gering, da nur die Randbereiche der Dichteverteilung des Radionuklids beschnitten werden.

Durch die Wahl der Anordnung der Reihenfolge der Fokussiereigenschaften der Quadrupole kann ein in der dispersiven Ebene schmaler Ionenstrahl durch den ESA transportiert werden. Dies wird durch die Reihenfolge: radial-axial-axial-radial-fokussierend erreicht.



Abbildung 18.: Ionenoptik der Isobarentrennung mit Degrader-Folie und ToF-System mit (rot) axialer und (schwarz) radialer Ortsabweichung. Die ToF-Start-Detektorposition ist bei einer relativen Sollbahnposition von *L*=0,3 m zur Degrader-Folie. Dargestellt sind zwei verschiedene Quadrupol-Dublett-Positionen. (Links) Quadrupol-Dublett 1,2 m nach Degrader-Folie, *T*=68%. (Rechts) Quadrupol-Dublett zentrisch zwischen ToF-Startund Stop-Detektor, *T*=50%. Gezeigt ist in beiden Bildern das gleiche Ionenstrahlbündel  $\mathcal{D}(m, E_0)$  nach dem Durchgang durch die Degrader-Folie vor dem ESA, welches bei *L*=0 m durch eine zweite Degrader-Folie ein Energiestraggling  $\Omega$ =10‰ und ein Winkelstraggling  $\Omega_{\theta}$ =5 mrad erfährt.

## Ionenoptik der Isobarentrennung mit Degrader-Folie und ToF-System

Für die Bestimmung der Gesamteffizienz der Isobarentrennung mit Degrader-Folie und Time-of-Flight-System muss die Transmission bestimmt werden, die durch das ionenoptische System erreicht werden kann. Das 4 m ToF-System zur Isobarentrennung besteht aus einer Degrader-Folie, einem ToF-Start-Detektor, einem Quadrupol-Dublett und einem ToF-Stop-Detektor. Die Degrader-Folie ist 0,3 m vor dem ToF-Start-Detektor im Waist nach dem ESA positioniert. Zwischen Start- und Stop-Detektor befindet sich eine 4 m lange Flugstrecke. Zur Erhöhung der Transmission wird ein Quadrupol-Dublett verwendet, welches innerhalb der Flugstrecke positioniert ist [137, 11, 138]. Das ToF-System ist nicht energiedispersiv und der Energieverlust in der Degrader-Folie ermöglicht die Isobarentrennung über die Flugzeit der Ionen.

Bei der Bestimmung der Transmission ist das Energiestraggling und das Winkelstraggling zu berücksichtigen. Die Position des Quadrupol-Dubletts wurde mit berechneten Werten des Energieverlustes, des Energiestragglings und des Winkelstragglings aus Kapitel 1.5 optimiert. Dazu wird das Ionenstrahlbündel aus der Berechnung nach dem Durchgang durch Degrader-Folie und ESA verwendet, welches mit einer weiteren 4 µm Degrader-Folie gestreut wird. Mit  $\Omega$ =10‰ und  $\Omega_{\theta}$ = 5 mrad für die Isotope <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr folgt eine Transmission *T*=68% bei der Positionierung des Quadrupol-Dubletts 1,2 m nach dem ToF-Start-Detektor. Durch das Abschneiden der Randtrajektorien resultiert ein Waistdurchmesser von 5,0 mm an der ToF-Stop-Detektorposition, siehe Abb. 18 links.



Abbildung 19.: Ionenoptik der Isobarentrennung mit gasgefülltem Magneten am Beispiel des 120°-Magneten am CologneAMS 6 MV Tandetron<sup>TM</sup>. Der Magnet hat einen Ablenkradius von  $\rho$ =455 mm und einen Kantenwinkel von  $\beta$ =46,6°. In der Region mit 4 mbar Stickstoff, von Fenster zu Fenster, wird beim Einschuss von 36 MeV <sup>36</sup>Cl (schwarz) und <sup>36</sup>S (rot) Ionen eine Energieverlustdifferenz von  $\delta E$ =0,46 MeV=4,3‰, ein Energiestraggling von  $\Omega(^{36}Cl)$ =0,274 MeV und  $\Omega(^{36}S)$ =0,13 MeV und ein Winkelstraggling von  $\Omega_{\theta}(^{36}Cl)$ =7,16 mrad und  $\Omega_{\theta}(^{36}S)$ =6,7 mrad generiert. Der simulierte Ionenstrahl ist (0,28, 0,6, 0,24, 0,69)<sup>T</sup>. Der Bereich mit magnetischem Fluss ist in grau eingezeichnet. Es resultiert ein mittleres Isobarentrennungsvermögen von  $\overline{U}$ =1,4.

Bei einem symmetrischen Aufbau des Quadrupol-Tripletts zwischen ToF-Startund ToF-Stop-Detektor resultiert eine Transmission T=50%, da mehr Randtrajektorien durch die Akzeptanz des Quadrupol-Dubletts abgeschnitten werden, siehe Abb. 18 rechts.

Durch die Populierung verschiedener Ladungszustände beim Durchgang durch die Degrader-Folie verringert sich die Transmission durch das ToF-System, da die Brennweiten der Quadrupollinsen nur für einen Ladungszustand gewählt werden können. Ebenso verringert die optische Transmission der ToF-Detektoren die Gesamttransmission.

### Ionenoptik der Isobarentrennung mit gasgefülltem Magneten

Die Bewegung von Ionen in einer mit Gas gefüllten Region mit magnetischem Fluss kann durch eine Kreisbahn zum mittleren Ladungszustand approximiert werden [78]. Dadurch ist die Lösung der Bewegungsgleichung für die lineare Näherung der Ionenoptik erhalten, wodurch die gleichen Transfermatrizen verwendet werden können.

Die Kantenfokussierung, die bei Analysiermagneten eine hohe Transmission bewirkt, ist bei gasgefüllten Magneten zur Isobarentrennung hinderlich. Winkeldispersive Ionenstrahlen werden beim Eintritt in den Magneten dispersiver und ebenso beim Austritt aus der Feldregion. Dies zeigt sich bei der Betrachtung des



Abbildung 20.: Simulation zum Ablenkwinkel eines gasgefüllten Magneten. Mittleres Isobarentrennungsvermögen  $\overline{U}$  gegen den Ablenkwinkel ohne Kantenfokussierung bei gleichbleibendem Ablenkradius  $\rho$ , Gesamtenergieverlust  $\delta E$ , Energiestraggling  $\Omega$  und Winkelstraggling  $\Omega_{\theta}$ .

Matrixeintrags  $T_{21}$ =tan $\beta/\rho$  der Kantenfokussierung.

$$\alpha_2 = T_{21} \cdot x_1 + \alpha_1 = \frac{\tan\beta}{\rho} x_1 + \alpha_1$$

Die Simulation der Isobarentrennung für verschiedene Ablenkwinkel ohne Kantenfokussierung wurde mit LIMIOPTIC2 durch die Änderung der Ionenenergie nach annähernd infinitesimalen Driftstrecken durchgeführt. Dabei wurde das mittlere Isobarentrennungsvermögen  $\overline{U}$  für verschiedene Ablenkwinkel bei gleichbleibendem Ablenkradius  $\rho$ , Gesamtenergieverlust  $\delta E$ , Energiestraggling  $\Omega$  und Winkelstraggling  $\Omega_{\theta}$  berechnet, siehe Abb. 20. Der Verlauf zeigt eine maximale mittlere Isobarentrennungsvermögen von  $\overline{U}=2\pm0,3$  bei einem Ablenkwinkel von 120° bis 140°.

Die Simulation der Isobarentrennung mit dem 120°-Magneten am CologneAMS 6 MV Tandetron<sup>TM</sup> wurde ebenfalls mit LIMIOPTIC2 durch die Änderung der Ionenenergie nach annähernd infinitesimalen Driftstrecken durchgeführt, siehe Abb. 19. Der Magnet hat einen Ablenkradius von  $\rho$ =455 mm und einen Kantenwinkel von  $\beta$ =46,6°. In der Region mit 4 mbar Stickstoff von Fenster zu Fenster wird beim Einschuss von 36 MeV <sup>36</sup>Cl Ionen (schwarz) und <sup>36</sup>S Ionen (rot) eine Energieverlustdifferenz von  $\delta E$ =0,46 MeV=4,3‰, ein Energiestraggling von  $\Omega(^{36}Cl)$ =0,274 MeV und  $\Omega(^{36}S)$ = 0,13 MeV sowie ein Winkelstraggling von  $\Omega_{\theta}(^{36}Cl)$ =7,16 mrad und  $\Omega_{\theta}(^{36}S)$ =6,7 mrad generiert. Der simulierte Ionenstrahl ist das Bündel  $\mathcal{D}$  zu X(0)= (x, x', y, y')<sup>T</sup>= (0,28, 0,6, 0,24, 0,69)<sup>T</sup>. Der Bereich mit magnetischem Fluss ist in grau eingezeichnet. Es resultiert ein mittleres Isobarentrennungsvermögen von  $\overline{U}$ =1,4.

Da am Magneteingang die Orts- und Winkelabweichungen klein sind, ist der



Abbildung 21.: Projektanalyse Big-Karl. Das 145 t Massenspektrometer in der Strahlrohrhalle des IKP Köln am FN-Tandembeschleuniger. Für die Statik hätten drei Stützen in der darunterliegenden 6 MV Tandetronhalle aufgestellt werden müssen.

Einfluss der mit Gas gefüllten Driftstrecke vor dem Eintritt in die Region mit magnetischem Fluss gering. Durch das Energiestraggling und Winkelstraggling in der Region mit magnetischem Fluss wird die Fokussierung des Ionenstrahlbündels aufgehoben und die Emittanz am Magnetausgang groß. Da am Magnetausgang die Orts- und Winkelabweichungen groß sind, wird das Ionenstrahlbündel defokussiert.

# 1.6.2. Projektanalyse Big-Karl

Durch das großzügige Angebot des Forschungszentrum Jülich, Institut für Kernphysik 4, COSY, der Universität zu Köln das Massenspektrometer Big-Karl zu überlassen, wurde eine Projektanalyse notwendig, die Kosten und Nutzen erhebt.

Big-Karl ist ein QQDDQ Magnetspektrometer welches, zur Spektroskopie von geladenen Teilchen von 1979 bis 1993 am Jülicher Isochron-Zyklotron [139, 140] verwendet wurde. Nach dem Umbau an das Cooler-Synchrotron (COSY) im Jahr 1993 [141] wurde es für Experimente zu Mesonenproduktion verwendet, für die das Seitenjoch modifiziert wurde [142].

Das hochauflösende Magnetspektrometer Big-Karl besteht aus den Quadrupolen Q1 und Q2, den Dipolmagneten D1 und D2 und dem Quadrupol Q3, siehe Abb. 21. Die technischen Eigenschaften sind in Tab. 9 zusammengefasst [143]. Die Quadrupole Q1 und Q2 erzeugen in radialer Richtung einen Waist vor dem Dipol D1. In axialer Richtung wird ein Waist zwischen den beiden Dipolen erzeugt. Dieser Effekt wird durch die Kantenfokussierung zwischen den Dipolen verstärkt. Die Polschuhkrümmungen dienen der Korrektur zweiter Ordnung. Mit Quadrupol Q3 wird in radialer Richtung ein Waist in der senkrecht zur Sollbahn stehenden Fokalebene produziert [144]. Mit ihm kann auch die Dispersion geändert werden [139]. Mit den Ht-Spulen können Feldfehler korrigiert werden, die durch me-

Allgemeine Spezifikationen			
Auflösung $p/\Delta p$	3x1	.04	
Massen-Energie-Produkt	540 am	u∙MeV	
Winkelakzeptanz d $\Omega_x$ (R=6 keV)	$\pm 15$ r	nrad	
Winkelakzeptanz d $\Omega_{\nu}$ (R=6 keV)	$\pm 60 \text{ r}$	nrad	
Kinematischer Korrekturfaktor	K=0	0 <i>,</i> 8	
Schwenkbar	-10° bis 140°		
Spezifikationen	D1	D2	
Polform	Н	Н	
Magnetische Flussdichte	2 T	2 T	
Ablenkradius	1920 mm	1920 mm	
Ablenkwinkel	78,3°	78,3°	
Eingangswinkel	0°	30°	
Ausgangswinkel	30°	0°	
Polabstand	60 mm	60 mm	
Polbreite	600 mm	820 mm	
Kantenradius am Eingang	1050 mm	-2500 mm	
Kantenradius am Ausgang	106 mm	-3570 mm	
Spulenstrom	1000 A	1000 A	
Anzahl H <sub>t</sub> -Spulen	40	48	
Anzahl Netzgeräte H <sub>t</sub> -Spulen	10	12	
Strom H <sub>t</sub> -Spulen	250 A	250 A	
Gewicht	50 t	70 t	
Spezifikationen Quadrupol	Q1 und Q2	Q3	
Spulenstrom	500 A	700 A	
Gewicht	2,5 t	10 t	

Tabelle 9.: Technische Daten von Big-Karl.

chanische Toleranzen entstehen [145, 140]. Eine Messung der Feldhomogenität ist bei Hürlimann zu finden [139]. Das Detektorsystem besteht aus einer Vieldraht-Driftkammer, die in radialer und axialer Richtung positionsauflösend ist, mit dahinter liegenden energieauflösenden Plastik-Szintillationszählern. Der mit Gas gefüllte Detektorbereich ist durch je eine 6 µm aluminiumbedampfte Mylar-Folie vom Hochvakuum im Magnetspektrometer und zu den Szintillationszählern getrennt. Die Messdrähte in radialer und in axialer Richtung sind durch eine weitere 6 µm aluminiumbedampfte Mylar-Folie getrennt [146]. Details über kinematische Korrekturen über Multipolfelder, die eine richtungsabhängige Energiedispersion ermöglichen, können bei Enge gefunden werden [144].

Die Steuerung der Netzteile des Magnetspektrometers, die von Külz aufgebaut und programmiert wurde, ist nicht mehr vorhanden [147]. Zu steuern waren 4 Netzteile für die Dipolspulen mit je 500 A, 2 Netzteile für die Quadrupole Q1 und Q2 mit je 500 A, 1 Netzteil für Quadrupol Q3 mit 700 A und 22 Netzteile für die H<sub>t</sub>-Spulen mit je 250 A. Das Hochvakuum der Dipole von  $1 \times 10^{-6}$  mbar wurde über drei Öldiffusionspumpen erreicht. Die Magnetkammer ist doppelt O-Ring gedichtet, deren Zwischenraum differentiell gepumpt wird.

#### Die Entscheidung gegen den Aufbau von Big-Karl am IKP Köln

Das Magnetspektrometer Big-Karl sollte am IKP Köln zur Kernstrukturanalyse, wie z.B. ( $\alpha$ , $\alpha'$ )-Messungen, als recoil Massenseparator und für AMS-Messungen im gasgefüllten Modus zur Isobarentrennung eingesetzt werden. Dazu wurde der Aufbau am Strahlrohr für AMS-Messungen am FN-Tandembeschleuniger geplant.

Die ionenoptischen Rechnungen zeigten, dass es kein direktes Hindernis für den Aufbau gegeben hätte. Die Achromatizität hätte mit einer weiteren Linse zwischen dem 90°-Analysiermagneten II und dem ESA erreicht werden können, diese ist nicht in Abb. 21 gezeigt. Beide Linsen hätten jeweils eine teleskopische Abbildung erzeugt. Eine ungünstige Linsenposition innerhalb der Strahlenschutzwand wäre möglich gewesen. Bei den AMS-Messungen im gasgefüllten Modus, mit einer Sollbahnlänge von  $L_B$ =5,2 m im gasgefüllten Bereich mit magnetischem Fluss, hätten sehr niedrige Gasdrücke eingestellt werden müssen.  $L_B$  weicht deutlich von den Werten anderer Forschungseinrichtungen ab, vgl. Tab. 4. Hierzu wären weitere Berechnungen notwendig gewesen, da Kleinwinkelstreuungen mit großen mittleren freien Weglängen zu einer hohen Strahlaufweitung führt. Der Detektor von Big-Karl wäre durch den hohen Energieverlust in den dicken aluminiumbedampften Mylar-Folien nicht verwendbar gewesen. Auch die Verwendung eines einzelnen Dipols wurde überdacht. Das mittlere Isobarentrennungsvermögen für einen Ablenkwinkel von  $\theta$ =78,3° ist  $\overline{U}$ =1,95, siehe Abb. 20.

Für den Aufbau der Komponenten mit einem Gesamtgewicht von 145 t hätte die Tragfähigkeit der Decke zum zweiten Tiefkeller nicht ausgereicht. Es müssten drei zusätzliche Säulen in der Beschleunigerhalle des 6 MV Tandetron<sup>™</sup> aufgestellt werden. Das 0°-Strahlrohr hätte erheblich verkürzt und das Strahlrohr L15 hätte komplett abgebaut werden müssen. Problematisch wäre der Zugang zum Notausgang gewesen, da er in der Ecke der Strahlrohrhalle liegt, die von dem Magnetspektrometer versperrt würde.

Die Transportkosten der Einzelteile von Jülich nach Köln, inklusive Zusammenbau und Positionierung durch die Firma COLONIA stellten sich mit ca. 70.000 Euro als sehr hoch heraus. Des Weiteren hätten sehr leistungsstarke Netzteile für die Dipole angeschafft werden müssen.

Zum Vergleich der Kosten wurde ein speziell für die AMS-Anlage ausgewählter Magnet bei verschiedenen Firmen angefragt. Die Firma Danfysik bot einen  $135^{\circ}$ -Magneten mit 900 mm Ablenkradius und  $L_B$ =2,12 m für 129.410 Euro an.

Aufgrund der hohen Einschränkungen der Messplätze, der sehr großen Sollbahnlänge im mit Gas gefüllten Bereich mit magnetischem Fluss und den sehr hohen Transportkosten entschied man sich gegen den Aufbau von Big-Karl am IKP Köln. Durch eine nationale Ausschreibung gemäß §3 Abs. 1 VOL/A 2009 konnte der 135°-Magnet bei der Firma Danfysik bestellt werden.

# Kapitel 2.

# **Experimenteller Aufbau**

Das AMS-System für mittelschwere Radionuklide am Kölner FN-Tandembeschleuniger wurde aufgebaut, um das Messangebot von CologneAMS um weitere Isotopenverhältnisse, wie z.B. (<sup>32</sup>Si/Si), (<sup>41</sup>Ca/Ca), (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn) und (<sup>60</sup>Fe/Fe), zu erweitern. Der AMS-Aufbau wurde in das bestehende Strahltransportsystem des FN-Tandembeschleunigers integriert, um die Messungen der Isotopenverhältnisse zu ermöglichen, ohne die bestehenden Aufbauten zur Kernstrukturanalyse zu stören. Im Weiteren wird das Hochenergie-Massenspektrometer detailliert beschrieben, welches im Rahmen dieser Arbeit berechnet, aufgebaut und getestet wurde, siehe Abb. 23. Die Gesamtübersicht der Beschleunigeranlage des Instituts für Kernphysik, Abb. 1, Seite 3, zeigt den neuen AMS-Aufbau (rot). Eine detaillierte Beschreibung des Injektors findet sich in [135], die ersten Performance-Tests des Injektors sind bei Altenkirch [148] zu finden. Gesteuert wird der Aufbau über speicherprogrammierbare Steuerungen (SPS) S7-200 von Siemens, die über ein Labview-Programm angesprochen werden. Das Labview-Programm wurde von Feuerstein geschrieben [12]. Zum schnellen Tuning der ionenoptischen Elemente zeichnete sich die Steuerung über Drehsetzsteller aus, die auf vier Steuerboards in das Kontrollpult integriert wurden, siehe Abb. 22. Dort befinden sich ebenfalls die Steuerrechner des Aufbaus.



Abbildung 22.: Übersicht über das Kontrollpult des AMS-Systems am FN-Tandembeschleuniger mit Steuerungsrechner, Datenaufnahmerechner, Steuerboards mit Drehsetzstellern und Keithley-Nanoamperemeter.



<ul> <li>Faraday-Cup Gasionisationsdetektor</li> <li>Schieber 1</li> <li>Baron-und Kühlwasserranschluss Analysiermagnet II</li> <li>Brron-und Kühlwasserverteiler</li> <li>Kühlwasseranschluss Vakuumkammer</li> <li>Fr-Controller 1 und 2</li> <li>Vakuum-Messsonde, Bypass, Belüftungsventil</li> <li>Vakuum-Messonde, Bypass, Belüftungsventil</li> <li>Chribopumpe 1</li> <li>Schieber 2</li> <li>Turbopumpe 2</li> <li>Signaldurchführungen Offset-Faraday-Cups</li> <li>Schieber 3</li> <li>Rohrverbindung im Bereich der Stapelwand</li> <li>Vakuum-Messonde, Bypass, Belüftungsventil</li> <li>Turbopumpe 2</li> <li>Schieber 3</li> <li>Rohrverbindung im Bereich der Stapelwand</li> <li>Vakuum-Messonde, Bypass, Belüftungsventil</li> <li>Turbopumpe 3</li> <li>Rohrverbindung im Bereich der Stapelwand</li> <li>Vakuum-Messonde, Bypass, Belüftungsventil</li> <li>Turbopumpe 3</li> <li>Schieber 4</li> <li>Schieber 4</li> <li>Schieber 5</li> <li>Kakuum-Messonde, Bypass, Belüftungsventil</li> <li>Turbopumpe 4</li> <li>Vakuum-Messonde, Bypass, Belüftungsventil</li> <li>Turbopumpe 4</li> <li>Vakuum-Messonde, Bypass, Belüftungsventil</li> <li>Schieber 5</li> <li>Schieber 6</li> <li>Schieber 6</li> <li>Schieber 6</li> <li>Schieber 5</li> <li>Schieber 5</li> <li>Schieber 6</li> <li>Schieber 6</li> <li>Schieber 5</li> <li>Schieber 5</li> <li>Schieber 6</li> <li>Schieber 5</li> <li>Schieber 5</li> <li>Schieber 5</li> <li>Schieber 6</li> <li>Schieber 5</li> <li>Schieber 5</li> <li>Schieber 6</li> <li>Schieber 7</li> <li>Schieber 7</li> <li>Schieber 6</li> <li>Schieber 6</li> <li>Schieber 6</li> <li>Schieber 7</li> <li>Schieber 7</li> <li>Schieber 7</li> <li>Schieber 7</li> <li>Schieber 6</li> <li>Schieber 7</li> <l< th=""><th>liche Ansicht entsprechend der Sollbahn. Die projektiven technischen Komponenten sind unter 1-41 (blau) einge-</th></l<></ul>	liche Ansicht entsprechend der Sollbahn. Die projektiven technischen Komponenten sind unter 1-41 (blau) einge-
444444444440000000000000000000000000000	e seit mess
<ol> <li>90°-Analysiermagnet I</li> <li>Blende</li> <li>Messplatz II - Würfel</li> <li>Messplatz III - T-Rohr</li> <li>Messplatz III - T-Rohr</li> <li>Messplatz III - T-Rohr</li> <li>Messplatz III - T-Rohr</li> <li>00°-Analysiermagnet II</li> <li>NMR-Sonde</li> <li>00°-Faraday-Cup</li> <li>00°-Faraday-Cup</li> <li>00°-Faraday-Cup</li> <li>00°-Faraday-Cup</li> <li>00°-Faraday-Cup</li> <li>00°-Faraday-Cup</li> <li>00°-Faraday-Cup</li> <li>11 Automatisierte Positioniertische</li> <li>12 Silizium-Detektor</li> <li>13 Blende</li> <li>14 Magnetischer y-Steerer</li> <li>15 Magnetischer y-Steerer</li> <li>16 Quadrupol-Triplett</li> <li>17 Messplatz IV - Würfel</li> <li>18 Strahlrohrkeuzung</li> <li>19 Targetleiter mit Quarz</li> <li>20 Sichtfenster auf Quarz</li> <li>21 Targetleiter Timt Faraday-Cup</li> <li>22 Quadrupol-Dublett</li> <li>23 Targetleiter II mit Faraday-Cup</li> <li>24 Magnetleiter II mit Faraday-Cup</li> <li>25 Silizium-Detektor</li> <li>26 Sichtitze</li> <li>27 Silizium-Detektor</li> <li>28 Silizium-Detektor</li> <li>28 Silizium-Detektor</li> <li>29 Time-of-Flight Start-Detektor</li> <li>23 Time-of-Flight Start-Detektor</li> <li>23 Time-of-Flight Start-Detektor</li> <li>23 NMR-Sonde</li> <li>23 NMR-Sonde</li> <li>23 Schlitze</li> </ol>	ten Hochenergie-Massenspektrometers. Gezeigt ist di Buchstaben (rot) dargestellt. Die ionenoptischen und nenten sind unter 42-77 (blau) eingezeichnet.
	Abbildung 23.: Übersicht des gesan Abschnitte sind mit arabischen zeichnet. Die technischen Kompc

# 2.1. Injektor und Niederenergieseite

Der Injektor für AMS-Messungen am FN-Tandembeschleuniger verfügt über eine NEC MC-SNICS Ionenquelle, die bis zu 40 Proben in einem Probenrad aufnehmen kann. Das achromatische Massenspektrometer besteht aus einem sphärischen 90° elektrostatischen Analysierer ( $\rho$ =0,435 m) und einem doppelt fokussierenden 90°-Magneten ( $\rho$ =0,435 m) mit einer elektrisch isolierten Vakuumkammer für den schnellen sequenziellen Einschuss von Radionuklid und stabilem Isotop. Die gemessene Massenauflösung ist m/ $\Delta$ m=353(43), siehe [148]. Zur Verbesserung der Strahlqualität ist der Injektor auf einer Hochspannungsplattform aufgebaut, deren Strahlrohr über eine Vorbeschleunigungsstrecke und ein elektrostatisches Quadrupol-Triplett an das Strahltransportsystem des FN-Tandembeschleunigers angeschlossen ist. Eine geometrische Engstelle, die passiert werden muss, ist ein 20°-Magnet, der zum Betrieb einer Middleton-Ionenquelle und eines Duoplasmatrons verwendet wird. Zwischen Linse I und Linse II befindet sich eine Chopper- und Buncher-Einheit, siehe Abb. 15.

# Bouncer

Der schnelle sequenzielle Einschuss von Radionuklid und stabilem Isotop in den FN-Tandembeschleuniger erfolgt über die Änderung der magnetischen Steifigkeit durch Beschleunigung vor dem magnetischen Sektorfeld im Bouncer-Gap. In dem zweiten Bouncer-Gap nach dem magnetischen Sektorfeld wird durch entgegengesetzte Beschleunigung die magnetische Steifigkeit zurück zum ursprünglichen Wert geändert. Zur schnellen Änderung des elektrischen Feldes können bis zu drei verschiedene voreingestellte Spannungen an die Magnetkammer gelegt werden. Dazu wird die HV-Switchbox von de Haas et al. [149] verwendet, an die drei Präzisions-Hochspannungsmodule, DPR 50-205-24-5-EPU, angeschlossen sind. Die Hochspannugsschalter der HV-Switchbox werden über eine optische Verbindung von einem Mikrokontroller, Leonardo ETH Arduino, gesteuert, der sich auf Erdpotential befindet und das Timing-Signal zur Datenverarbeitung bereitstellt. Beispielhafte Timing-Signale für die Stromintegratoren der Offset-Faraday-Cups und der Datenaufnahme sind bei Suter et al. [150] zu finden. Die Präzisions-Hochspannungsmodule werden über die SPS auf der HV-Plattform gesteuert und können maximal  $\pm 5$  kV bei 2 mA zur Verfügung stellen.

# 2.2. FN-Tandembeschleuniger

Der Kölner FN-Tandembeschleuniger ist Nummer 7 von insgesamt 19 gebauten Exemplaren. Der elektrostatische Tandembeschleuniger, dessen Terminal von einer epoxydgeklebten Glas- und Stahl-Kolonne getragen wird, wird von zwei Pelletron-Ketten aufgeladen, vgl. McKay und Westerfeld [151]. Verwendet wird SF<sub>6</sub> als Isoliergas bei einem Druck von 6,8 bar. Der Tandembeschleuniger kann zuverlässig bei einer Terminalspannung von 9,5 MV betrieben werden. Höhere Terminalspannungen sind möglich, führen jedoch zu Schäden an den Röhren und wurden deshalb bei den hier durchgeführten Berechnungen und Messungen nicht erwogen.

Die Spannungsregelung des Tandembeschleunigers erfolgt über eine Corona-Entladung, die durch ein Signal des Generating-Voltmeter (GVM) oder den geteilten Eintrittsblenden der Offset-Cups geregelt wird, analog zur Schlitz-Regelung, vgl. Rohrer und Schnitter [151]. Für Testmessungen ist die GVM-Kontrolle von ausreichender Stabilität. Für AMS-Messungen erreicht man durch die Regelung über das Signal des stabilen Isotops eine höhere Stabilität. Als Stripper werden Kohlenstofffolien verwendet, die in einer Trommel mit 180 Folienplätzen vorgehalten werden. Ein Gasstripperkanal mit einem Durchmesser von 7 mm und einer Länge von 43 cm befindet sich vor der Stripperfolienmechanik in der Terminalbox. Das angeschlossene Thermo-Leak-Ventil ist nicht in Funktion. Ebenso gibt es kein Gassystem, Turbopumpen oder Vakuummesssonden im Terminal. Die Inbetriebnahme des Gasstrippers ist sinnvoll, da bei einem Betrieb mit niedrigem Gasdruck und Stripperfolie die Coulombexplosion reduziert wird und sich die Transmission erhöht. Die gemessene Transmission von Protonen durch den FN-Tandembeschleuniger bei der Verwendung von Stripperfolien ist 50%.

# 2.3. Hochenergie-Massenspektrometer

Das Hochenergie-Massenspektrometer kann in sechs thematische Bereiche unterteilt werden:

- 90°-Analysiermagnet II
- Quadrupol-Triplett
- Elektrostatischer Analysierer
- Time-of-Flight-System
- Gasgefüllter Magnet
- Gasionisationsdetektor

Der 90°-Analysiermagnet II wurde hinter dem bestehenden 90°-Analysiermagneten I aufgebaut. Das Strahlrohr passiert die Strahlenschutzwand im Bereich der Stapelwand. Die Sektionen ESA und ToF-System wurden auf der Stapeldecke über dem 6 MV Tandetron<sup>™</sup> aufgebaut und haben deshalb mit 107 cm eine geringere Strahlrohrhöhe als der restliche Aufbau mit 178 cm. Die Sektion Quadrupol-Triplett verbindet die Sektionen. Eine Übersicht der 6 MV AMS-Anlage, die sich im zweiten Tiefkeller befindet, ist bei Dewald et al. [10] zu finden. Der 135°-Magnet, der im gasgefüllten Modus betrieben wird, steht auf der ebenerdigen Stapeldecke über dem Ionenquellenbereichs des zweiten Tiefkellers. Der Gasionisationsdetektor, der final zur Isobarenseparation verwendet werden soll, befindet sich zurzeit



Abbildung 24.: Übersicht des Messaufbaus am 90°-Analysiermagnet II zur Messung des elektrischen Signals durch das stabile Isotop bei AMS-Messungen. Mit dem Silizium-Detektor vor dem 90°-Analysiermagneten II wurde das Energiespektrum des Beschleunigeruntergrunds gemessen. An den dahinter liegenden Messstellen II und III wurde mit Schlitzblenden und dem Ionenstrom im 0°-Faraday-Cup die Emittanz gemessen. Mit einem Silizium-Detektor auf einem Positioniertisch eines Offset-Cups wurde über die Messung der Energieverteilung zu verschiedenen Ablenkradien der kontinuierliche Untergrund bestimmt, vgl. Abb. 25.

noch in Planung. Die große Innenhöhe der Vakuumkammer ermöglicht den Einbau eines kompakten Gasionisationsdetektors, vgl. [15], wodurch eine Flugstrecke im Gas ohne Magnetfeld ganz vermieden werden kann.

## 2.3.1. 90°-Analysiermagnet II

Der 90°-Analysiermagnet II hat einen Ablenkradius von  $\rho$ =1,1 m und ist doppelt fokussierend. Verwendet wurde der Magnet zuvor an der Universität Utrecht zur Impulsseparation bei AMS-Messungen an einem 6 MV EN-Tandembeschleuniger [152]. Das Massen-Energie-Produkt ist mit 124 amu·MeV ausreichend, um die mittelschweren Isotope <sup>53</sup>Mn und <sup>60</sup>Fe im 10<sup>+</sup> bei 100 MeV zu analysieren. Der maximale magnetische Fluss von 1,52 T wird bei 295 A und 48 V erreicht.

Zur Versorgung des Magneten wird das Netzgerät TNs 50-17500 von Heinzinger verwendet. Für höhere Stabilität beim Messbetrieb soll das Netzgerät System 3000 von Danfysik verwendet werden. Der magnetische Fluss wird mit einem Gaußmeter, NMR20 von Caylar, gemessen. Es stehen zwei Messsonden mit den Messbereichen 0,3 T-1,5 T und 0,42 T-2,1 T bei einer absoluten Genauigkeit von 0,0005 T zur Verfügung. Die Höhe der Vakuumkammer des Magneten ist 30 mm. Die Vakuumkammer wird von außen mit Wasser gekühlt.

### Offset-Faraday-Cups

Die Winkelakzeptanz des Aufbaus zur Messung der stabilen Isotope in den Offset-Faraday-Cups ist durch den Eintritt in die Zwischenkammer auf 3° beschränkt, da diese ursprünglich an einem Analysiermagneten mit einem Ablenkradius  $\rho$ =1 m verwendet wurde, vgl. [152]. Die Winkelakzeptanz ist ausreichend für die Messung von (<sup>32</sup>Si/Si), (<sup>41</sup>Ca/Ca), (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn) und (<sup>60</sup>Fe/Fe). Die Messungen von (<sup>10</sup>Be/<sup>9</sup>Be) und (<sup>14</sup>C/<sup>12</sup>C) sind nicht möglich, da die gleichzeitige Messung der Isotope nicht erreicht werden kann. In Utrecht war die Messung möglich, da die Reihenfolge von ESA und Analysiermagnet umgekehrt war, und das Radionuklid in einem Gasionisationsdetektor in der Offset-Faraday-Cup-Kammer gemessen wurde. Zur Verwendung des Magneten zur Ablenkung in die Strahlrohrhalle musste das Außenjoch umgedreht werden, damit die Sichtachsen der gedrehten Vakuumkammer durch die vorgefertigten Öffnungen passten.

Die Offset-Faraday-Cups sind auf einer Trägerplatte an der Rückseite der Offset-Faraday-Cup-Kammer befestigt und können auf Teilkreisnuten verschoben werden. Die zwei Positioniertische, welche über eine Mikrometerschraube und eine bewegliche Welle von außen per Hand verfahren werden konnten, wurden mit Piezo-Linear-Aktuatoren, Modell N-381K.3A von Physik Instrumente (Pi), automatisiert und werden mit Piezo-Walk-Kontrollern, Modell E-861.1A1 von Pi, angesteuert und die Position ausgelesen. Der maximale Stellweg der Tische ist 30 mm. Es stehen drei Offset-Faraday-Cups für die Messung der stabilen Isotope zur Verfügung, von denen zwei mit einem festen Abstand auf einem Positioniertisch montiert sind. Alle drei Offset-Faraday-Cups haben eine magnetische Sekundärelektronenunterdrückung und geteilte Eintrittsblenden.

Das elektrische Signal der stabilen Isotope wird über Low-Noise Current Preamplifier, Modell SR570 von SRS, digitalisiert und an die Datenaufnahme gegeben. Das elektrische Signal der geteilten Eintrittsblenden kann zur Messung der Strahlposition ausgelesen werden und wird zur Steuerung der Terminalspannung an die Verstärker der Schlitz-Regelung des 90°-Analysiermagneten I angeschlossen. Ein 0°-Faraday-Cup ist in die Zwischenkammer zum Tuning der Pilotstrahlen eingebaut. Der 0°-Faraday-Cup verfügt über eine Gegenspannungsblende mit einem Durchmesser der Eingangsöffnung von 6 mm, magnetische Sekundärelektronenunterdrückung und Innenblenden zum Fangen der Sekundärelektronen.

Vor dem 0°-Faraday-Cup soll eine 3 mm Blende zur Strahloptimierung, die pneumatisch aus dem Strahlengang gefahren werden kann eingebaut werden. Hinter der Position der Offset-Faraday-Cups wurde auf der optischen Achse eine 8 mm Blende eingebaut um den Untergrund bei der <sup>41</sup>Ca-Messung zu reduzieren.

### Messplätze

Es stehen verschiedene Messplätze vor dem 90°-Analysiermagneten II zur Verfügung. In der Vakuumsektion des 90°-Analysiermagneten I befindet sich ein Linearaktuator, mit dem eine Blende mit 2 mm Durchmesser in den Strahlengang gefahren werden kann. An dieser Position soll später ein x-Schlitz-Paar am Objektpunkt des 90°-Analysiermagneten II eingebaut werden. Der Objektpunkt liegt 172 mm innerhalb der Vakuumkammer des 90°-Analysiermagneten I, wobei der Austrittsflansch der Vakuumkammer nicht auf der Sollbahn liegt, was beim Bau der x-

Schlitze berücksichtigt werden muss. Für die Steuerung der x-Schlitze sind zwei MLS 16-25 S3 Lineardurchführungen mit Schrittmotorantrieb von VAb vorgesehen. Hinter dem sektionstrennenden Schieber befindet sich ein Messwürfel, in dem eine Faraday-Cup und ein Silizium-Detektor an einer Lineardurchführung befestigt ist. An den darauffolgenden Messstellen, die 1,08 m auseinander liegen, wurden mit jeweils einer Schlitzblende an einer Lineardurchführung mit Schrittmotorantrieb die Emittanzmessungen durchgeführt, siehe Kapitel 3.3. Ein schneller Umbau dieser Sektion ist nach Bedarf möglich. Zu beachten ist, dass der Auflagepunkt des Fernrohres zur Ausrichtung des FN-Tandembeschleunigers im Kreuzungspunkt der Sollbahn des 90°-Analysiermagneten I nicht verstellt werden darf, wodurch der Strahlrohrdurchmesser an dieser Stelle auf 2" beschränkt ist. Von diesem Punkt ist auch die Ausrichtung des 90°-Analysiermagneten II mit der Wandmarkierung auf der HE-Seite möglich. Zur Ausrichtung der Achse bis zum ESA wurde ein Theodolit fest an der Wand der Tandemhalle montiert und über die Justierstifte des 90°-Analysiermagneten II ausgerichtet. Danach war eine Ausrichtung der Offset-Faraday-Cup-Kammer, des Quadrupol-Tripletts und des elektrostatischen Analysierers möglich.

### Messaufbau mit Silizium-Detektor



Abbildung 25.: Mit einem Silizium-Detektor auf einem Positioniertisch eines Offset-Faraday-Cups wurde über die Messung der Energieverteilung zu verschiedenen Ablenkradien der kontinuierliche Untergrund bestimmt, der durch Streuung und Umladung am Restgas entsteht. Der Faraday-Cup kann vor den Silizium-Detektor geklappt werden (rot).

Für die Bestimmung des Untergrunds durch Streuung und Umladung am Restgas in den Beschleunigungsröhren wurde ein Silizium-Detektor auf dem Positioniertisch eines Offset-Faraday-Cups montiert, vor den ein Faraday-Cup geklappt werden konnte, siehe Abb. 25. Über die Messung der Energieverteilung zu verschiedenen Ablenkradien konnte der kontinuierliche Beschleunigeruntergrund bestimmt werden, siehe Kapitel 3.2.

# 90°-Analysiermagnet II-Sekundäre-Infrastruktur

Das Untergestell des 90°-Analysiermagneten II wurde von der Feinmechanik-Werkstatt des IKPs geplant und gebaut. Es verteilt die Last des Magneten auf eine Fläche von 2 m<sup>2</sup>. In dem Untergestell wurde die Druckluftverteilung und die Kühlwasserverteilung mit Wasserwächtern für den Magneten und für das Magnet-Netzgerät eingebaut. Das Interlock zum Schutz des Magneten und des Magnet-Netzgeräts befindet sich in der Unterverteilung HE-AMS I. Das Untergestell der Zwischenkammer und der Offset-Faraday-Cup-Kammer wurde aus Aluminiumprofil gebaut, welches an die Auflagepunkte der Kammern angepasst wurde. In die seitlichen 19"-Aufnahmen sind zwei Turbomolekularpumpen-Kontroller eingebaut. Nach dem Test der Low-Noise Current Preamplifier, Model SR570 SRS, werden diese ebenfalls dort eingebaut. Die Vakuumbereiche 90°-Analysiermagnet II und Offset-Faraday-Cup-Kammer sind durch einen 476 mm×50 mm Rechteckschieber getrennt. Die Vakuumsektion der Offset-Faraday-Cup-Kammer endet mit dem Handschieber vor der Strahlenschutzwand. Beide Sektionen werden über je eine Turbomolekularpumpe und eine gemeinsame Vorvakuumpumpe abgepumpt. Bypässe zum Vorvakuumbereich sowie Belüftungsventile sind vorhanden. Der Strahlenschutz um das Strahlrohr im Bereich der Stapelwand ist mit Quarzsand in Sandsäcken ausgeführt. Es befindet sich eine O-Ring gedichtete Rohrverbindung des Strahlrohrs im Bereich der Stapelwand. Für eine Reparatur dieser Verbindung empfiehlt sich die Öffnung der Stapelwand von der Seite der Strahlrohrhalle.

# 2.3.2. Quadrupol-Triplett

Die Sektion des Quadrupol-Tripletts verbindet die Sektionen 90°-Analysiermagnet II und ESA. In dieser Sektion kreuzt das Strahlrohr L30 den Aufbau. Eine weitere Kreuzung mit dem noch nicht aufgebauten Strahlrohr L45 ist möglich oder der Aufbau eines Wien-Filters. In Messplatz IV, einem Messwürfel vor der Strahlrohrkreuzung, wurde der Test eines Rutherford-Backscattering-Aufbaus durchgeführt, vgl. Udovcic [153]. Das Quadrupol-Triplett ist eine magnetische Linse, von Spectromagnetics, mit einem maximalen magnetischem Fluss von 0,365 T. Die Linse hat einen Innendurchmesser von 3″, einen maximalen Strom von 30 A bei 12 V und ist luftgekühlt. Sie ist 720 mm lang und hat einen Außendurchmesser von 394 mm. Die Steuerung erfolgt über die vorhandene Fernsteuerung am FN-Steuerpult der HE-Linsenumschaltung und ist an den Anschluss der Linse L45 angeschlossen, da dieses Strahlrohr nicht durch die Stapelwand gelegt wurde, und das AMS-Strahlrohr bei der Planung der Linsenumschaltung nicht berücksichtigt wurde.

### Quadrupol-Triplett-Sekundäre-Infrastruktur

Das Strahlrohr L30 und der AMS-Aufbau haben in diesem Abschnitt ein gemeinsames Vakuumsystem und nur eine Vakuummesszelle, was an der Strahlrohrumschaltung nicht ersichtlich ist. Der Betrieb des Quadrupol-Tripletts mit zwei steuerbaren Netzgeräten ermöglicht keine Einstellung einer astigmatischen Fokussierung. Der Aufbau des Quadrupol-Tripletts und der Kabeltrassen sind in diesem Bereich so gewählt, dass die Balkendecke für Arbeiten am 6 MV Tandetron<sup>™</sup> entfernt werden kann. Das Untergestell der Strahlrohrkreuzung ist so aufgebaut, dass sowohl die Strahlrohrkreuzung selbst als auch die vier Strahlrohrenden ausgerichtet werden können. Die Sektionen sind über vier Bellows verbunden. In dem Untergestell befindet sich der Turbomolekularpumpen-Kontroller sowie die Netzgeräte des Quadrupol-Dublett vor dem ESA.

### 2.3.3. Elektrostatischer Analysierer

Der elektrostatische Analysierer hat einen Ablenkwinkel von 30° und einen Ablenkradius von  $\rho$ =3,5 m. Er ist einfach fokussierend, hat einen Plattenabstand von 30 mm und eine Plattenhöhe von 175 mm. Die maximale elektrische Feldstärke ist 6,66 MV/m. Mit dieser elektrischen Feldstärke ist eine Messung der Isotope  $^{53}$ Mn und <sup>60</sup>Fe im 9<sup>+</sup> bei 100 MeV möglich. Die Deflektorplatten sind aus Titan gefertigt, die jeweils von drei Hochspannungsisolatoren getragen werden. Die Randfelder an den Hochspannungsisolatoren sind auf jeder Seite durch einen abgerundeten Metallring reduziert, um Entladungen entlang der Keramikoberfläche zu verhindern. Die Vakuumkammer ist aus Edelstahl. Der Rohreingang zur Turbomolekularpumpe ist abgerundet. Die Felder am Ein- und Ausgang der Deflektorplatten werden durch Randfeld-Schunts begrenzt und definieren den Ablenkwinkel. Der Abstand der symmetrisch geerdeten Randfeld-Schunts ist 4,5 cm. Der Eintrittspunkt in das elektrische Feld nach der Näherung über rechteckige Äquipotentialflächen nach Wollnik ist  $\xi^*=14$  mm, siehe [134]. Von Danfysik wird ein Abstand von 15 mm angegeben. Der Abstand der Randfeld-Schunts zueinander ist dabei 3 cm. Zur Ausrichtung der Magnetkammer befinden sich auf beiden optischen Achsen zwei Passstiftbohrungen im Rand des Deckels der Vakuumkammer. Da diese nicht auf der Strahlrohrhöhe liegen, und somit nicht von der Seite des 90°-Analysiermagneten II gesehen werden können, wurde von der Feinmechanik-Werkstatt des IKPs ein Ausrichtwerkzeug aus Werkzeugstahl hergestellt, welches es ermöglicht, einen Passstift in der Vakuumkammer auf die Strahlrohrhöhe zu setzen. An die beiden ISO-100 Vakuumflansche des Ein- und Ausgangs können zum Ausrichten Glastargets eingesetzt werden. Betrieben wird der ESA mit zwei Netzgeräten, WR125P/N2 von Glassman, die eine maximale Spannung von  $\pm$ 125 kV bei 2 mA liefern können. Die Netzgeräte werden über 0-10 V Signale über die SPS 4 gesteuert. Die 11 bit Auflösung (11 bit+Vorzeichen) der S7-200 ist ausreichend für die


Abbildung 26.: Übersicht des Messaufbaus mit 30°-ESA. In der ersten Degrader-Folie wurde ein Energieverlust generiert. Mit chromatischer Fokussierung wurde im Silizium-Detektor die Energie überprüft und die Isobarentrennung bestimmt. Mit dem PXAMS-Aufbau im Strahlrohrkreuz des ToF-Start-Detektors konnten Ionen nach der K<sub> $\alpha$ </sub>-Energie identifiziert werden. Der 2-Anoden-Gasionisationsdetektor wurde direkt nach dem ESA montiert, um die Transmission zu erhöhen.

Messungen über den gesamten nutzbaren Spannungsbereich 0-100 kV.

Das Projekt des AMS-Aufbaus am Kölner FN-Tandembeschleuniger wurde bei der Anschaffung des ESAs durch die Exzellenzinitiative ULDETIS gefördert.

Vor und hinter dem ESA befindet sich jeweils ein Quadrupol-Dublett. Das Quadrupol-Dublett vor dem ESA ist eine magnetische Linse von Varian mit einem maximalen magnetischem Fluss von 0,515 T. Die Linse hat einen Innendurchmesser von 2,5", einen maximalen Strom von 30 A bei 26 V und ist luftgekühlt. Sie ist 463 mm lang und hat einen Außendurchmesser von 430 mm. Das Quadrupol-Dublett nach dem ESA ist eine magnetische Linse von Spectromagnetics mit einem maximalen magnetischem Fluss von 0,45 T. Die Linse hat einen Innendurchmesser von 3", einen maximalen Strom von 30 A bei 27 V und ist luftgekühlt. Sie ist 730 mm lang und hat einen Außendurchmesser von 440 mm. Beide Linsen werden durch jeweils zwei Netzgeräte, TOE 8871-40 von Toellner, betrieben. Sie werden über 0-10 V Signale über die SPS 4 gesteuert.

#### Targetleitern

Vor dem elektrostatischen Analysierer im Waist des Objektpunktes befindet sich eine Targetleiter mit einem Faraday-Cup und sechs Positionen für 8 mm×8 mm Degrader-Folien auf 14 mm×14 mm Rahmen. Der Faraday-Cup hat eine Eintrittsblende mit 8 mm Durchmesser, welche zur Sekundärelektronenunterdrückung auf Hochspannung gelegt ist. Der Faraday-Cup ist aus Tantal gebaut, die Rückwand des Faraday-Cups ist mit 5 mm Kohlenstoff ausgekleidet. Die Targetleiter ist an einer MLS 16-100 S3 Lineardurchführung mit Schrittmotorantrieb von VAb montiert. Hinter dem ESA im Waist des Bildpunktes befindet sich eine Targetleiter mit einem Faraday-Cup und drei Positionen für 20 mm×20 mm Degrader-Folien auf 32 mm×32 mm Rahmen. Der Faraday-Cup hat eine Eintrittsblende mit 8 mm Durchmesser, welche zur Sekundärelektronenunterdrückung auf Hochspannung gelegt ist. Der Faraday-Cup ist aus Tantal gebaut, die Rückwand des Faraday-Cups ist mit 5 mm Kohlenstoff ausgekleidet. Die Targetleiter ist an einer MLS 16-100 S3 Lineardurchführung mit Schrittmotorantrieb von VAb montiert.

### ESA-Schlitze

Der Aufbau verfügt über ein x-Schlitz-Paar direkt vor dem Eingang der ESA-Vakuumkammer zur Reduzierung des Untergrunds durch Beschneidung der Randtrajektorien vor der Transformation der Energieverteilung nach der Degrader-Folie in eine räumliche Verteilung. Die x-Schlitze werden per Hand bedient. Die Schlitze selbst sind aus Rundedelstahl gefertigt.

Das zweite x-Schlitz-Paar befindet sich vor der zweiten Targetleiter. Die 1 mm dicken und 25 mm hohen Tantalbleche können vor die 20 mm breiten Degrader-Folie gefahren werden. Die Schlitze sind jeweils an einer MLS 16-25 S3 Lineardurchführung mit Schrittmotorantrieb von VAb montiert.

#### Schrittmotorsteuerung

Die Steuerung der Dreiphasenschrittmotoren erfolgt über einen Stepper Driver, Lexium SD315ON10B400 von Schneider Electric, der über ein Microkontroller, Lenardo ETH von Arduino, über Ethernet angesprochen wird. Der Microkontroller wird über eine Labview-Steuerung vom Kontrollpult des AMS-Aufbaus gesteuert. Das zugehörige Programm wurde von Tim Voss im Rahmen seiner Bachelorarbeit geschrieben [154]. An die Targetleitersteuerung können zwei Dreiphasenschrittmotoren angeschlossen werden, die zeitgleich gefahren werden können. Die ESA-Bild-Schlitze werden über die ESA-Schlitzsteuerung gesteuert, die einen Stepper Driver, Lexium SD315ON10B400 von Schneider Electric, über ein Relais mit den Dreiphasenschrittmotoren verbunden werden. Deshalb werden die Schlitze links und rechts einzeln gefahren.

### Szintillator-Quarz

Hinter der ersten Targetleiter wurde zur Strahldiagnose ein Szintillator-Quarz eingebaut. Er kann über eine Lineardurchführung auf die Sollbahn gefahren werden. Eine Kamera überträgt das Bild des leuchtenden Quarz auf einem Monitor am Kontrollpult der AMS-Anlage. Das Fenster, durch die die Kamera gerichtet ist, befindet sich vor dem Quarz unter einem 10° Winkel, so dass die Parallaxe gering ist. Getestet wurden verschiedene Quarztypen. 1. YAG:Ce 2 mm Dicke, 20 mm Durchmesser von Crytur, 2. Lochquarz 1 mm Dicke, 10 mm Durchmesser, 1 mm Lochdurchmesser. Der YAG:Ce Quarz zeigte sehr gute Lichtausbeuten bei dem Test mit <sup>54</sup>Fe mit 100 MeV. Mit dem Lochquarz konnte gezeigt werden, dass der Ionenstrahl an dieser Stelle eine Strahlbreite von <1 mm besitzt.

# Strahldiagnose mit Silizium-Detektor

Der Silizium-Detektor, der zur Strahldiagnose verwendet werden kann, wird pneumatisch auf die Sollbahn gefahren. Der Silizium-Detektor hat eine Eintrittsblende aus Tantal mit einem Durchmesser von 5 mm. Um den Detektor vor dem direkten Ionenstrahl zu schützen, ist im Strahlrohr ein Schutzblech aus Tantal eingebaut. Das Tantalblech ist 0,5 mm dick und hat eine Öffnung mit einem Durchmesser von 30 mm auf der Sollbahn. Der Silizium-Detektor wurde für die Messungen in Abb. 39 in Kapitel 3.5 verwendet.

#### Messaufbau mit Projektil X-Ray Detektor und Gasionisationsdetektor

Die ersten Testmessungen mit dem Gasionisationsdetektor hinter dem ToF-System zeigten, dass die Isobarentrennung mit Degrader-Folie und ESA in Kombination mit dem 2-Anoden Gasionisationsdetektor ausreichend ist. Deshalb wurde zur Erhöhung der Transmission der Gasionisationsdetektor direkt hinter dem Vakuum-kreuz des ToF-Start-Detektors montiert. In das Vakuumkreuz wurde der Projektil X-Ray Detektor zur Strahldiagnose eingebaut. Dieser Messaufbau ist in Abb. 26 dargestellt.

#### ESA-Sekundäre-Infrastruktur

Das Untergestell des elektrostatischen Analysierers besteht aus drei einzelnen Säulen und wurde bei Danfysik speziell für die Strahlrohrhöhe von 107 cm bestellt. Zwischen den Säulen befinden sich die Hochspannungsanschlüsse und die Turbomolekularpumpe, an die eine eigene Vorvakuumpumpe angeschlossen ist. Der Bereich ESA ist in zwei Vakuumsektionen unterteilt. Die Sektion mit dem ESA selbst ist so klein wie möglich, damit diese bei Umbauarbeiten nicht belüftet werden muss. Der ESA ist durch ein Sekuvac von Leybold vor aufsteigendem Öl aus der Vorvakuumpumpe bei Pumpenausfall geschützt. Die Hochvakuummesszelle ist so nah wie möglich an dem ESA montiert und befindet sich zwischen ESA und dem zweiten Quadrupol-Dublett. Die Vakuumsektion im Bereich der zweiten Targetleiter verfügt über einen Bypass zum Vorvakuumbereich sowie über ein Nadelventil zur Belüftung. Zur Vakuummessung steht eine Vorvakuumanzeige, Bourdonvac A von Leybold, und eine Mehrbereichsmesszelle, VSM77D von Thyracont, zur Verfügung. In das Untergestell des ersten Quadrupol-Dubletts sind die Hochspannungsnetzgeräte des elektrostatischen Analysierers eingebaut sowie der Kontroller der ESA-Turbomolekularpumpe. In das Untergestell des zweiten Quadrupol-Dubletts sind die Netzgeräte des zweiten Quadrupol-Dubletts eingebaut sowie die SPS-4 und die Targetleitersteuerung.



Abbildung 27.: Übersicht des Messaufbaus mit 4 m ToF-System und Gasionisationsdetektor. Mit der zweiten Degrader-Folie wurde ein Energieverlust der Ionen generiert und mit dem ToF-System wurde die Flugzeit über eine Flugstrecke von 4 m gemessen. Im Messwürfel nach dem Quadrupol-Dublett wurde der PXAMS-Aufbau getestet.

# 2.3.4. Time-of-Flight-System

Das ToF-System besteht aus zwei baugleichen Start- und Stop-Detektoren, zwischen denen eine Flugstrecke von 4 m liegt. Die Detektoren sind detailliert in Kapitel 2.4 beschrieben. Mit der zweiten Degrader-Folie, die sich im Waist nach dem ESA befindet, wird ein Energieverlust der Ionen generiert und die Flugzeit über die Flugstrecke von 4 m gemessen. Das Quadrupol-Dublett beginnt 1,2 m nach der Degrader-Folie und fokussiert die Ionen auf den Stop-Detektor. Hinter dem ToF-Stop-Detektor befindet sich der 135°-Magnet, der für die Isobarenunterdrückung im gasgefüllten Modus genutzt wird. Das Quadrupol-Dublett im ToF-System ist eine magnetische Linse von Spectromagnetics mit einem maximalen magnetischem Fluss von 0,45 T. Die Linse hat einen Innendurchmesser von 3", einen maximalen Strom von 30 A bei 27 V und ist luftgekühlt. Sie ist 730 mm lang und hat einen Außendurchmesser von 440 mm. Die Linse wird durch zwei Netzgeräte, TOE 8871-40 von Toellner, betrieben. Sie werden über 0-10 V Signale über die SPS 4 gesteuert. Vor dem Stop-Detektor befindet sich ein Faraday-Cup, der pneumatisch in den Strahlengang gefahren werden kann. Im Messwürfel nach dem Quadrupol-Dublett wurde der PXAMS-Aufbau getestet, siehe Kapitel 3.8.

#### Messaufbau mit ToF-System und Gasionisationsdetektor

Die ersten Testmessungen mit dem Gasionisationsdetektor wurden hinter dem ToF-System durchgeführt. Zu diesem Zeitpunkt war der Aufbau des 135°-Magneten noch in Planung. Der Messaufbau mit Degrader-Folie, ToF-System und Gasionisationsdetektor ist in Abb. 27 dargestellt.

### ToF-Sekundäre-Infrastruktur

Die Vakuumsektion im Bereich des ToF-Stop-Detektors verfügt über einen Bypass zum Vorvakuumbereich sowie ein Nadelventil zur Belüftung. Zur Vakuummessung steht eine Vorvakuumanzeige, Bourdonvac A von Leybold, und eine Mehrbereichsmesszelle, VSM77D von Thyracont, zur Verfügung. Im Untergestell des Quadrupol-Dublett sind die Netzgeräte der ToF-Linse eingebaut, die 4-Kanal Vakuum Anzeige VD10S8 von Thyracont und das Netzgerät der Faraday-Cup-Gegenspannung. Im Untergestell des ToF-Stop-Detektors befinden sich zwei Crates, in denen die Elektronik des ToF-Systems eingebaut ist. Die hintere Stütze des Untergestells wurde beim Aufbau des 135°-Magneten gekürzt.

# 2.3.5. Gasgefüllter Magnet

Der 135°-Magnet, der im gasgefüllten Modus betrieben werden soll, ist einfach fokussierend und hat einen Ablenkradius von 900 mm. Er hat ein Massen-Energie-Produkt von 61 amu·MeV und erreicht eine maximale magnetische Flussdichte von 1,25 T bei 210 A und 80 V. Die radiale Feldhomogenität ist  $4 \cdot 10^{-4}$  Tm auf  $\pm 50$  mm. Die Breite der Vakuumkammer ist 300 mm und die Gap-Höhe ist 50 mm. Er hat fünf Radialports mit einer Winkelteilung von 22,5° sowie zwei Viewingports. Im Magnetpol befinden sich auf jeder Sichtachse zwei Bohrungen für die Justierstifte zum Ausrichtung des Magnets. Die Magnetkammer ist O-Ring gedichtet. Der untere O-Ring wurde bei der Montage mit schmalen Kunststoffbändern gehalten, die nach dem Auflegen der Kammer leicht herausgezogen werden konnten. Die Einzelteile des Magneten haben ein Gewicht von unter 5 Tonnen, damit diese in der Strahlrohrhalle mit dem Deckenkran bewegt werden können. Die einzelnen Schichten sind über Passstifte zusammengefügt, die durch Durchgangslöcher der oberen Schichten entfernt werden können. Die gesamten technischen Spezifikationen sind in Tab. 31 zu finden.

Zur Messung des magnetischen Flusses wird ein NMR, 851PC von UPTECH, verwendet, das einen Messbereich von 0,1 T-2,3 T hat, bei einer absoluten Genauigkeit von  $\pm$ 10ppm ( $\pm$ 0,00001 T bei 2,3 T). Das Kontrollmodul der NMR-Sonden wird über RS232 vom Steuerrechner am AMS-Kontrollpult ausgelesen.

#### Deckenöffnung Strahlrohrhalle

Der 135°-Magnet wurde über die Deckenöffnung der Strahlrohrhalle in den Tiefkeller eingebracht. Da der Deckenaufbau zuvor nicht bekannt war, wird dieser im Folgenden beschrieben: Kiesschicht, Betonplatten, Sand ca. 5 cm, Bautenschutzmatte 1 cm, Teerpappe, Bautenschutzmatte 1 cm, erste Schicht Formglas 5 cm, zweite Schicht Formglas 5 cm, Teerpappe, Beton-Balkenlage längs, Beton-Balkenlage quer, Folie, Beton-Balkenlage längs. Die Betonplatten haben die Maße 5 m×1,5 m×0,25 m und wiegen ca. 5 Tonnen. Sie haben jeweils 4 Kugelkopfanker, UKK 2,5 von DE-HA, an denen sie angehoben werden müssen. Die Beton-Balken können über handelsübliche Anschlagmittel wie Bandschlingen oder Schäkel angeschlagen werden. Die maximale Deckenlast unter der Deckenöffnung beträgt 1,0 t/m<sup>2</sup>. Das Ablegen der Magnetjochteile im Bereich der Stapeldecke über dem Quellenbereich der 6 MV AMS-Anlage ist deshalb nicht möglich, ohne die Decke abzustützen.

# 135°-Magnet-Sekundäre-Infrastruktur

Der 135°-Magnet steht auf zwei 300 mm×350 mm-Stahlträgern, die eine Spannweite von 3,34 m überbrücken, damit die Last des Magneten auf die Stahlträger im zweiten Tiefkeller übertragen wird, die unter der Stapeldecke liegen. Zur Anpassung der Statik auf die Last von 14 Tonnen wurde im zweiten Tiefkeller eine zusätzliche Stütze 160 mm×160 mm eingebaut. Der Magnet wird über drei Netzgeräte, SM 80-80 von Delta-Elektronika, betrieben. Die Temperatur des Magneten wird über die Signale der Temperaturschalter an den Magnetspulen am Interlockeingang der Netzgeräte überwacht. Die Netzgeräte sind unter dem Magneten im Zwischenraum zu den Stahlträgern eingebaut. Dort befindet sich ebenfalls das NMR-Kontrollmodul. Zum Ausrichten des Gasionisationsdetektors hinter dem Magneten wurde ein weiterer Theodolit an der Wand der Strahlrohrhalle montiert. Im Bereich zwischen Wand und Magnet wurde eine 80 cm breite Treppe über die Träger gebaut, um den Fluchtweg von dem Bereich der Stapeldecke sicherzustellen.

# 2.4. Detektorsysteme

Die abschließende Isobarenunterdrückung nach dem Durchgang durch die Degrader-Folien und das ToF-System wird in einem Gasionisationsdetektor erreicht. Es kann momentan entweder ein 2-Anoden-Gasionisationsdetektor oder ein Bragg-Detektor verwendet werden. Ein Gasionisationsdetektor des ehemaligen Utrechter AMS-Systems mit 10 Anoden, von denen 2 gesplittet werden, wird wieder in Betrieb genommen. Die verwendeten Detektorsysteme, ToF-Start- und ToF-Stop-Detektor, 2-Anoden-Gasionisationsdetektor und Bragg-Detektor werden im Folgenden einzeln beschrieben.

# 2.4.1. Time-of-Flight-Detektor

Die beiden ToF-Start- und ToF-Stop-Detektoren sind baugleich und bestehen aus einem Konversions-Modul und einer "Microchannel-Plate (MCP)"-Baugruppe. Beide Module sind kollinear um 45° zur Sollbahn der Ionen geneigt, mit dem Mittelpunkt des Konversions-Moduls auf der Sollbahn.

Im Konversions-Modul werden Sekundärelektronen erzeugt und in Richtung MCP-Baugruppe beschleunigt. Das Konversions-Modul besteht aus einer dünnen Kohlenstofffolie einer Dicke von 15  $\mu$ g/cm<sup>2</sup> mit den Abmessungen 3 cm×2,5 cm, die zwischen zwei Gittern mit einer optischen Transmission von 92,2% montiert ist. Die optische Transmission ist hoch, damit die Beeinflussung des Ionenstrahls



Abbildung 28.: Time-of-Flight-Detektor. In der 15 μg/cm<sup>2</sup> Kohlenstofffolie werden Sekundärelektronen erzeugt, die durch ein elektrisches Feld zur "Microchannel-Plate" (MCP) beschleunigt werden. Durch die Sekundärelektronenvervielfachung in der MCP wird ein elektrisches Signal an der Anode messbar. Verwendet werden zwei F4655-13 Hamamatsu MCPs mit einem Radius von 7,25 mm. Die Verarbeitung des Signals erfolgt über zwei "Constant Fraction Discriminator" (CFD) und einen "Time to Amplitude Converter" (TAC). Start- und Stop-Detektor sind identisch aufgebaut.

so gering wie möglich ist. Die Wolfram-Drähte des Gitters haben einen Durchmesser von 0,001'' und sind auf einem Rahmen mit den Maßen  $5,5 \text{ cm} \times 5,5 \text{ cm}$  befestigt. Die Kohlenstofffolie wird auf eine Spannung von -3 kV gelegt. Die Gitter befinden sich auf 0 V.

Die MCP-Baugruppe, F4655-13 von Hamamatsu, ist eine Einheit aus zwei gestapelten MCPs, einer Anode, einer Schutzelektrode vor der MCP und einem BNC-Anschluss. Die MCP hat einen effektiven Radius von 7,25 mm. Die Kanäle der MCPs haben einen Durchmesser von 4 µm. Die Vorder- und Rückseite der MCP sind metallbeschichtet. Die Eingangsspannung ist -2,5 kV und die MCP-Ausgangsspannung ist -0,5 kV. Der Durchgangswiderstand liegt im Bereich von 10  $\Omega$  bis 100  $\Omega$ . Die Verstärkung entsteht durch Sekundärelektronen, die im elektrischen Feld beschleunigt werden, und durch Stöße mit den Wänden der Kanäle weitere Elektronen auslösen und eine Sekundärelektronen-Lawine verursachen. Die Anode und das Gitter vor der MCP befinden sich auf einem Potential von 0 V. Zwischen dem Konversions-Modul und der MCP-Baugruppe befindet sich eine feldfreie Driftstrecke von 80 mm.

Mit dieser Art von Detektoren ist eine schnellere Zeitsignalerzeugung im Vergleich zu Detektoren mit elektrostatischem Spiegel möglich. Es sind zudem keine weiteren Drähte im Strahlengang. Die erreichte intrinsische Zeitauflösung ist 246 ps, vgl. [12]. Eine Vergleichsmessung dieser MCP ist in [40] zu finden.

#### Elektronik des ToF-Systems und Zeit-Kalibration

Durch die Sekundärelektronenvervielfachung in der MCP wird ein elektrisches Signal an der Anode messbar. Mit einem "Constant Fraction Discriminator" (CFD) wird aus diesen Signalen ein Zeitsignal erzeugt, das unabhängig von der Signalintensität ist. Verwendet wurden zwei CFDs, 935 von Ortec. Aus den Signalen der CFDs wird von einem "Time to Amplitude Converter" (TAC) ein Spannungspuls generiert, der proportional zur Zeitdifferenz des Start- und Stop-Signals ist. Verwendet wurde ein TAC, 566 von Ortec. Die Spannungspulse werden von einem "Analog to Digital Converter", Dual ADC Model 7072 von FAST ComTec, konvertiert und von einem "Multiparameter Multichannel Analyzer System", MPA-3 von FAST ComTec, aufgezeichnet.

Kalibriert wurde die Elektronik des ToF-Systems inklusive der Kabel von Startund Stop-Detektor mit einem Pulsgenerator, der Spannungspulse im 50 ns, 100 ns und 200 ns Zeitabstand erzeugt. Die Zeitdifferenz der Pulse wurde mit dem MPA-3 System und einem Oszilloskop, DSOX3054A von Agilent, gemessen.

#### Vorverstärker Anode 1 $\overline{35}$ Anode 2 2 • о 2 23 Ŀ Frisch-Gitter ۰ 54HV-Anschluss SiN-Fenster Gasanschluss 45 Kathode Gehäuse 70

#### 2.4.2. 2-Anoden-Gasionisationsdetektor

Abbildung 29.: Der 2-Anoden-Gasionisationsdetektor hat eine aktive Länge von 54 mm und ein Eintrittsfenster aus SiN, 8 mm×8 mm. Die Vorverstärker sind direkt an der Rückseite des Detektors montiert, um Rauschen zu reduzieren. Die Spannungen werden über einen Spannungsteiler betrieben. Es werden nur schwach ausgasende Materialien wie PCTFE verwendet.

Der 2-Anoden-Gasionisationsdetektor basiert auf dem Design des Züricher Gasionisationsdetektors nach Müller et al. [93]. Der Detektor verfügt über zwei trapezförmige Anoden mit einer aktiven Länge von 54 mm. Das Frisch-Gitter besteht aus goldbeschichteten Wolfram-Drähten und hat eine optische Transparenz von 92%. Das Eintrittsfenster aus SiN hat eine Größe von 8 mm $\times$ 8 mm. Es können verschieden dicke SiN-Folien eingebaut werden, je nach Detektordruck. Eine Dicke von 100 nm ist ausreichend für einen Druck von 150 mbar. Da der Detektor ohne Gaszirkulation betrieben werden soll, wurde auf die Auswahl der verwendeten Materialien geachtet. Es werden nur schwach ausgasende Materialien wie PCTFE verwendet. Als Detektorgas wird Isobutan verwendet. Für einen stabilen Messbetrieb werden alle Spannungen des Detektors über Spannungsteiler von einem Netzgerät betrieben. Die Kathode befindet sich auf 0 V, das Frisch-Gitter auf 250 V und die Anode auf 500 V. Die Vorverstärker, PSC-2008, sind direkt an der Rückseite des Detektors montiert, um Rauschen zu reduzieren. Die Signale werden durch Hauptverstärker, 572A von Ortec, verstärkt. Die Ausgangssignale werden von den ADCs digitalisiert und vom MPA-3 System aufgenommen. Die Signale der beiden Anoden werden einzeln und in Koinzidenz aufgenommen.

# 2.4.3. Bragg-Detektor



Abbildung 30.: Das Design des Bragg-Detektors basiert auf dem brasilianischen Detektor nach Santos et al. [104] mit einer Anode mit einem Durchmesser von 8 cm. Das Frisch-Gitter hat eine optische Transparenz von 92%. Das Eintrittsfenster aus SiN hat eine Größe von 8 mm×8 mm. Es wurde ein Standard NEC 333 kV Beschleunigungsrohr verwendet. Potentiale werden durch einen Spannungsteiler erzeugt.

Das Design des Bragg-Detektor basiert auf dem brasilianischen Detektor nach Santos et al. [104]. Der Detektor verfügt über eine Anode am Ende des Detektors mit einem Durchmesser von 8 mm. Das Frisch-Gitter vor der Anode besteht aus goldbeschichteten Wolfram-Drähten und hat eine optische Transparenz von 92%. Das Eintrittsfenster aus SiN hat eine Größe von 8 mm×8 mm. Zur Erzeugung des elektrischen Feldes in Richtung Anode und als Druckgehäuse wurde ein Standard-Beschleunigungsrohr, NEC 333 kV, verwendet. Der Feldgradient zwischen den Ringen wird über einen Spannungsteiler an der Außenseite des Detektors erzeugt. Der Rahmen des Eintrittsfensters ist die Kathode und liegt auf einer Hochspannung von bis zu -1,5 kV. Die Anodenspannung liegt auf 700 V. Das Frisch-Gitter befindet sich mit 200 V auf dem Potential des letzten Rings vor der Anode. Als Detektorgas wird Isobutan verwendet. Gegen Berührung der außenliegenden Spannungen wurde eine Kunststoffabdeckung um die Ringe gebaut. Die Signale der Anode werden über einen Vorverstärker, PCP 2006 von Canberra, vorverstärkt und von einem Timing Filter Amplifier, 474 von Ortec, verstärkt. Die Signale werden von einem 4-Kanal-Digitizer, DT5724-21 Desktop Waveform Digitizer von CAEN, aufgenommen.

# Kapitel 3.

# Testmessungen mit stabilen Isotopen

Die Überprüfung der einzelnen Komponenten des Strahltransportsystems und der Isobarenunterdrückung wurde mit stabilen Isotopen durchgeführt, da diese einfach in elektrisch messbaren Größen zu produzieren sind. Das Ziel aller Testmessungen war die Messung von (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn) Isotopenverhältnissen. Für die Messung von sehr kleinen Isotopenverhältnissen ist ein hoher Ionenstrom der Ionenquelle und eine hohe Transmission notwendig, die durch eine präzise Optimierung der ionenoptischen Elemente erreicht werden kann.

# 3.1. Injektor

Um einen hohen Ionenstrom aus der Ionenquelle und eine hohe Injektortransmission zu erreichen, und um die Funktion des Injektors zu testen, wurden verschiedene Testmessungen mit dem Niederenergie-ESA und dem Niederenergie-Magneten durchgeführt.

### **NE-Energiespektrum**

Die Energieverteilung der Ionen nach dem Niederenergie-ESA ist nicht diskret, sondern weist Nebenmaximas sowie einen kontinuierlichen Anteil auf. Bei der Messung der Energieverteilung waren die Quellenparameter  $U_{Sp}$ =5 kV und  $U_{Ex}$ = 18 kV. Die Energieverteilung ist ähnlich zu der Energieverteilung nach dem Niederenergie-ESA der 6 MV AMS-Anlage, vgl. [12]. Zu erkennen ist, dass hier keine "Flat-Top"-Struktur der Hauptkomponente vorhanden ist. Eine Überprüfung ergab, dass der Ionenstrahl nicht komplett auf den Faraday-Cup fokussiert werden konnte. Der Faraday-Cup war nicht auf der Sollbahn positioniert und ein Teil des Ionenstrahls wurde abgeschnitten. Dieses Problem ist nach der Messung behoben worden. Die Messung der negativen und positiven Ionen in Abb. 31 wurde bei gleichen Einstellungen kurz hintereinander durchgeführt. Für die Messung der positiven Ionen wurde die Polarität des elektrostatischen Analysierers geändert. Der Untergrund der positiven Ionen ist negativ und in der Größenordnung 0,01 nA. Es können die Komponenten <sup>12</sup>C<sup>-</sup>, <sup>12</sup>C<sup>+</sup> und <sup>12</sup>C<sup>2+</sup> mit 23 keV identifiziert werden. Die positiven Ionen entstehen durch Umladungen am Restgas nach der Extraktion



Abbildung 31.: Gemessene Energieverteilung der Ionen nach dem Niederenergie-ESA,  $U_{\text{Sp}}$ =5 kV,  $U_{\text{Ex}}$ =18 kV. Die Messung der negativen Ionen (schwarz) und der positiven Ionen (rot) wurde bei gleichen Einstellungen kurz hintereinander durchgeführt. Für die Messung der positiven Ionen wurde die Polarität des elektrostatischen Analysierers geändert. Der Untergrund der positiven Ionen ist negativ und in der Größenordnung 0,01 nA. Es können die Komponenten  ${}^{12}\text{C}^{-}$ ,  ${}^{12}\text{C}^{+}$  und  ${}^{12}\text{C}^{2+}$  mit 23 keV identifiziert werden. Es gibt einen Hinweis auf eine  ${}^{12}\text{C}^{2-}$  Komponente mit 23 keV, die durch Elektroneneinfang nach einfach negativer Extraktion entstehen könnte.

aus der Ionenquelle. Über die Kalibration des ESA-Spektrums mit den positiven Ionen ist eine Komponente im Spektrum zu erkennen, die zu doppelt negativ geladenen Ionen gehören könnte. Es könnten  ${}^{12}C^{2-}$  Ionen nach einfach negativer Extraktion, mit 23 keV, durch einen weiteren Elektroneneinfang entstanden sein. Die Lebensdauer doppelt negativ geladener Ionen liegt nach Stuckey und Kieser in der Größenordnung von  $10^{-4}$  s [155]. Die  ${}^{12}C^{2-}$  Ionen könnten in dieser Zeit eine 58 m lange Flugstrecke überdauern. Hinweise auf solche doppelt negativ geladene Ionen mit elektrisch messbaren Strömen nach Baumann et al. [156] konnten bei einer chemischen Überprüfung bisher nicht bestätigt werden, siehe Frees et al. [157].

#### **NE-Massenspektrum**

Die Massenauflösung des Injektors m/ $\Delta$ m=353(43) ist ausreichend, um mittelschwere Radionuklide messen zu können, siehe [148]. Ein entsprechendes Massenspektrum ist in Abb. 32 dargestellt. Es wurde bei möglichst geringer Schrittweite des Magnetstroms aufgenommen. Verwendet wurde eine <sup>13</sup>C+Ni Probe bei  $U_{Sp}$ =5 kV,  $U_{Ex}$ =18 kV,  $U_{Bouncer}$ =80 V,  $U_{ESA}$ =2,3 kV. Oben im Bild ist eine lineare und unten im Bild eine logarithmische Darstellung der selben Messung gezeigt, um die Intensitäten der starken Komponenten und den Untergrund hervorzuheben. Die Komponenten der hohen Massen mit geringer Intensität entstehen durch molekularen Untergrund.

Bei einer (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)–Messung werden am Injektor die Komponenten <sup>53</sup>MnO<sup>-</sup> und <sup>55</sup>MnO<sup>-</sup> sequenziell in den Beschleuniger eingeschossen, siehe Abb. 33. Zur Orientierung können in diesem Massenbereich die Kupfer-Komponenten verwendet werden, <sup>63</sup>Cu, <sup>65</sup>Cu, <sup>63</sup>CuO und <sup>65</sup>CuO, die eindeutig im Massenspektrum iden-



Abbildung 32.: Massenspektrum der Ionen nach dem Niederenergie-Magneten. <sup>13</sup>C+Ni Probe bei *U*<sub>Sp</sub>=5 kV, *U*<sub>Ex</sub>=18 kV, *U*<sub>Bouncer</sub>=80 V, *U*<sub>ESA</sub>=2,3 kV. Oben im Bild ist die lineare und unten die logarithmische Darstellung der selben Messung dargestellt. Die Komponenten der hohen Massen mit geringer Intensität entstehen durch molekularen Untergrund.



Abbildung 33.: Massenspektrum bei (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)–Messungen nach dem Niederenergie-Magneten. MnO<sub>2</sub>-Probe bei  $U_{Sp}$ =5,8 kV,  $U_{Ex}$ =19,97 kV,  $U_{Bouncer}$ =+430 V,  $U_{ESA}$ =2,577 kV. Gezeigt ist der hypothetische <sup>53</sup>MnO Anteil (rot) bei einem (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Isotopenverhältnis von *C*=1×10<sup>-13</sup>.



Abbildung 34.: Der ungefilterte Maschinenuntergrund des FN-Tandembeschleunigers,  $U_T$ =6 MV. Kalibriert durch die  ${}^{12}C^{4+}$  Komponente mit 30 MeV. Ein kontinuierlicher Untergrund wird von vielen Komponenten fester Energie überlagert, von denen die starken Komponenten  ${}^{12}C^{3+}$  mit 24 MeV und  ${}^{12}C^{5+}$  mit 36 MeV identifiziert werden können.

tifiziert werden können. Gemessen wurde eine MnO<sub>2</sub>-Probe bei den Einstellungen  $U_{Sp}$ =5,8 kV,  $U_{Ex}$ = 19,97 kV,  $U_{Bouncer}$ =+430 V,  $U_{ESA}$ =2,577 kV. Gezeigt ist zudem der hypothetische <sup>53</sup>MnO Anteil bei einem (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Isotopenverhältnis von C=1×10<sup>-13</sup>. Um das Isotopenverhältnis in einer Probe messen zu können müssen die Ionen, die diese Komponente überlagern, unterdrückt werden.

# 3.2. Magnetische Steifigkeit-Interferenzen

Direkt nach der Fertigstellung der Sektion 90°-Analysiermagnet II wurde mit Tests der Aufbauten begonnen. Dazu wurde mit <sup>12</sup>C ein Ionenstrahl gewählt, der einfach zu produzieren ist, und dessen Ladungszustände nach dem Tandembeschleuniger leicht zu finden sind. Ein Moleküleinschuss von <sup>40</sup>CaF<sub>3</sub> oder <sup>55</sup>MnO bietet sich nicht an, da die Injektions-Intensitäten und die Intensitäten der Ladungszustände dieser Isotope nach dem Tandembeschleuniger niedriger sind, und die Molekülfragmente viele Nebenkomponenten bilden. Ebenso sollten die Positionen der Offset-Faraday-Cups getestet werden. Mit diesen Messungen wurde auch die Steuerung über die Schlitz-Regelung getestet.

Der Einschuss in den 90°-Analysiermagneten II wurde durch eine Blende mit einem Durchmesser von 6 mm in Messplatz I festgelegt. Das System wurde auf den 0°-Faraday-Cup nach dem 90°-Analysiermagneten II mit der <sup>12</sup>C<sup>4+</sup> Komponente mit einer Energie von 30,08 MeV optimiert. Die Einstellungen waren dabei:  $U_{Sp}$ =4,38 kV,  $U_{Ex}$ =13,3 kV,  $U_{VB}$ =60,8 kV,  $U_{T}$ =6,0 MV. Mit einem Silizium-Detektor, der an der Targetleiter der Blende am Messplatz I in den Strahlengang gefahren werden konnte, wurde bei sehr geringer Ionisierertemperatur und geschlossenen NE-Schlitzen ein Energiespektrum nach dem FN-Tandembeschleuniger ohne jegliche Filterung mit magnetischen oder elektrischen Feldern aufgenommen, siehe Abb. 34. Es ist zu erkennen, dass viele Komponenten fester Energie zu einem kon-



Abbildung 35.: Messung der magnetischen Steifigkeit-Interferenzen nach dem 90°-Analysiermagneten II mit Silizium-Detektor zu verschiedenen relativen Positionen. (a) und (c) Komponenten durch Primärstrahlen ändern ihre Energie, (b) und (d) Komponenten durch Streuungen ändern ihre Intensität.

tinuierlichen Untergrund überlagern. Über die Kalibration mit der  ${}^{12}C^{4+}$  Komponente mit einer Energie von 30 MeV wurden die Ladungszustände 3<sup>+</sup> mit 24 MeV und 5<sup>+</sup> mit 36 MeV identifiziert.

Um den Maschinenuntergrund näher zu untersuchen, wurde ein Silizium-Detektor auf die Sollbahnposition der <sup>13</sup>C<sup>4+</sup> Komponente hinter dem 90°-Analysiermagneten II aufgebaut, siehe Abb. 25. Die <sup>12</sup>C<sup>4+</sup> Komponente mit 28,43 MeV wurde dafür auf den 0°-Faraday-Cup optimiert. Die Einstellungen waren dabei:  $U_{Sp}$ = 5,67 kV,  $U_{Ex}$ =18,12 kV,  $U_{VB}$ =60 kV,  $U_T$ =5,67 MV. Mit einem Faraday-Cup wurde der Strahlstrom der <sup>13</sup>C Komponente gemessen, während die Ionisierertemperatur gesenkt wurde, bis vor dem Silizium-Detektor kein elektrischer Strom mehr gemessen werden konnte. Der Faraday-Cup wurde erst danach wegrotiert, um den Silizium-Detektor vor Beschädigen zu schützen. Ohne die Beschleunigereinstellungen zu ändern, wurden mit verschiedenem Offset zur Sollbahn, Spektren mit dem Silizium-Detektor aufgezeichnet. Abb. 35 zeigt vier Relativpositionen, 0 mm, 8,5 mm, 13 mm und 23 mm, sowie vergrößerte Ausschnitte des Spektrums. Jede Messung zeigt eine feste magnetische Steifigkeit. Im Vergleich der magnetischen Steifigkeiten gibt es Komponenten (a) und (c), die ihre Energie ändern, (b) und (d), die ihre Intensität ändern. Die Komponente (a) entsteht durch einen Ionenstrahl, der eine höhere magnetische Steifigkeit besitzt, deren Randstrahlen durch die Wechselwirkung mit dem Restgas Energie verlieren und so in den Silizium-Detektor gelangen. Die Komponente (b) entsteht durch einen kontinuierlichen Untergrund, aus dem sie durch die Festlegung der Magnetischen Steifigkeit selek-



Abbildung 36.: Emittanzmessung mit der Doppelschlitzmethode. Der unkollimierte Ionenstrahl wurde auf den 0°-Cup hinter dem 90°-Analysiermagneten II fokussiert. Die Phasenraumellipse bleibt dabei unter linearen Kräften nach dem Liouville'schen Theorem erhalten. Die Messreihe besteht aus Einzellmessungen des Ionenstroms unter Änderung der Position  $S_2$  zu festen Positionen  $S_1$  (rot). Die normierte Emittanz ist 0,0693(8)  $\pi$  mm mrad.

tiert wird. Die Intensität steigt mit der magnetischen Steifigkeit. Die Komponente (c) entsteht durch den Primärstrahl. Die Komponente (d) entsteht ebenfalls durch einen kontinuierlichen Untergrund, aus dem sie durch die Festlegung der magnetischen Steifigkeit selektiert wird. Die Intensität steigt reziprok zur magnetischen Steifigkeit.

Die magnetischen Steifigkeit-Interferenzen entstehen durch das Aufbrechen der Moleküle <sup>12</sup>CH, vgl. [36, 113], sowie Ladungszustandsänderungen an bestimmten Stellen im Bereich der Beschleunigerröhren, sowie vor, im oder nach dem 90°-Analysiermagneten II, vgl. [37].

# 3.3. Ionenstrahlprofilmessung

Durch die Schrittmotor betriebenen Lineardurchführungen der Targetleitern wurde auf einfache Weise eine Messung der Emittanz auf der HE-Seite des FN-Tandembeschleunigers mit der Doppelschlitzmethode ermöglicht [136]. Um die Steuerung im Rahmen der Bachelorarbeit von Tim Voss zu testen, wurde die Emittanz von <sup>12</sup>C im 4<sup>+</sup> Ladungszustand bei  $U_T$ =5,56 MV gemessen [154]. Dazu wurde in den Messplätzen II und III, siehe Abb. 24, jeweils eine 1 mm breite Schlitzblende durch den Ionenstrahl gefahren. Der unkollimierte Ionenstrahl wurde zuvor auf den 0°-Cup hinter dem 90°-Analysiermagneten II fokussiert. Die Messung der Emittanz besteht bei der Doppelschlitzmethode aus mehreren Einzelmessungen, bei denen ein Schlitz S<sub>1</sub> (rot) auf eine feste Position gestellt wird, und mit dem zweiten Schlitz S<sub>2</sub> (schwarz) die Winkelverteilung der Ionen gemessen wird, siehe Abb. 36. Durch die Invarianz der Phasenraumellipse unter linearen Kräften nach dem Liouville'schen Theorem kann die Strommessung hinter dem Magneten erfolgen. Durch die Impulsdispersion des Magneten wird im Cup nur die Ionenstrahlkomponente mit der passenden magnetischen Steifigkeit gemessen. Die gemessene normierte Emittanz ist 0,0693(8)  $\pi$  mm mrad. Die von Han et al. [158] über eine Simulation bestimmte Emittanz der MC-SNICS ist 0,01  $\pi$  mm mrad.

# 3.4. Radiusmessung 90°-Analysiermagnet II

Zur Bestimmung des Radius des 90°-Analysiermagneten II wurden Messungen mit Protonen durchgeführt. Dabei wurde die Terminalspannung über den kalibrierten 90°-Analysiermagneten I bestimmt. Der berechnete Magnetradius liegt in guter Übereinstimmung mit den Herstellerangaben von 1,1 m, siehe Tab. 10. Die Anzeige der Terminalspannung lag um 30 kV unter der realen Terminalspannung.

Tabelle 10.: Radiusmessung des 90°-Analysiermagneten II.

Ion	$U_T$ [MV]	<i>B</i> [G]	E [MeV]	ρ [mm]
Н	8,85(1)	5568(1)	17,8(1)	1101(1)

Tabelle 11.: Identifikation der Ladungszustände von <sup>55</sup>Mn bei einer nominellen Terminalspannung von 9,27 MV unter Verwendung des gemessenen Magnetradius. Die reale Terminalspannung liegt 32 kV über der nominellen Terminalspannung.

Ion	q [e]	<i>B</i> [G]	E [MeV]	$U_T$ [MV]
<sup>55</sup> Mn	7	11789	72,42	9,304
	8	10956	81,70	9,301
	9	10278	91,00	9,301
	10	9712	100,31	9,302
	11	9230	109,63	9,303
				$\overline{U}_T$ =9,302(1)

Die Überprüfung der Terminalspannung erfolgte über die Ladungszustände von <sup>55</sup>Mn bei einer nominellen Terminalspannung von  $U_T$ =9,27 MV beim Einschuss des Moleküls <sup>55</sup>MnO<sup>-</sup>. Die Ladungszustände konnten eindeutig über die magnetische Steifigkeit identifiziert werden. Aus der Messung des Magnetfeldes folgt eine mittlere Terminalspannung von  $\overline{U}_T$ =9,302(1) MV. Die Differenz von 32 kV stimmt mit der Kalibrationsmessung des Radius überein, siehe Tab. 11.

# 3.5. Isobarentrennung mit Degrader-Folie und ESA

Die Messung der Unterdrückung mit Degrader-Folie und ESA wurde mit einem Silizium-Detektor mit einer 1 mm  $\times$  10 mm Schlitzblende durchgeführt. Die in der



(a) Parametrisierung für  $^{54}$ Fe bei einer Restenergie von E'=91,2 MeV nach Durchgang durch 1 µm SiN.

(b) Parametrisierung für <sup>54</sup>Fe bei einer Restenergie von E'=82,4 MeV nach Durchgang durch 1,9 µm SiN.



dispersiven Ebene verbleibende 1 mm breite Öffnung des Detektors ermöglicht eine hohe Ortsauflösung bei der Ionenmessung. Es wurde die Zählrate des Detektors zur elektrischen Feldstärke des ESAs gemessen. Zuvor wurde eine optimale Fokussierung der einzelnen Ladungszustände mit einem messbaren elektrischen Strom im Faraday-Cup nach dem ESA gemessen.

Zur Bestimmung der optimalen Fokussierung wurde ein <sup>54</sup>Fe Ionenstrahl mit einer initialen Energie von 100 MeV verwendet, sowie zwei verschiedene Foliendicken, d=1 µm und d=2 µm. Der elektrische Strom des Ionenstrahls im 10<sup>+</sup> Ladungszustand wurde vor dem ESA mit einem Faraday-Cup gemessen. Die Strahlintensität wurde mit den NE-Schlitzen auf 1 pnA reduziert, um Beschädigungen an der Degrader-Folie zu vermeiden. Der elektrische Strom im Faraday-Cup nach dem ESA wurde für jeden Ladungszustand einzeln optimiert. Dabei wurden die Quadrupole vor und nach dem ESA symmetrisch gefahren,  $I_{Q1}=I_{Q4} \wedge I_{Q2}=I_{Q3}$ . Aus dem funktionalen Verlauf der Messwerte in Abb. 37 können durch eine lineare Approximation die Linsenströme in Abhängigkeit der ESA-Spannung  $U_{ESA}$  parametrisiert werden. Diese Funktionen können in der Labview-Steuerung eingegeben werden und sind dazu in der Einheit kV/Platte angegeben.

1 μm Degrader-Folie:	2 μm Degrader-Folie:
$I_{Q_2} = I_{Q_3} = 0,29 \cdot U_{\text{ESA}} + 0,8$	$I_{Q_2} = I_{Q_3} = 0,20 \cdot U_{\text{ESA}} + 5,4$
$I_{Q_1} = I_{Q_4} = 0,18 \cdot U_{\text{ESA}} + 0,7$	$I_{Q_1} = I_{Q_4} = 0,17 \cdot U_{\text{ESA}} + 1,7$

In Abb. 37 sind die Steigungen der Geraden durch die Abhängigkeit der elektrischen Feldstärke mit dem Faktor 15 skaliert. Die Transformation ist  $|\vec{E}|=U_{\rm ESA}/15$ . Eine Funktion höherer Ordnung beschreibt den funktionalen Verlauf besser. Die theoretische Form der Funktion ist eine Stufenfunktion mit den Plateaumittelpunk-



Abbildung 38.: Isobarentrennung von <sup>54</sup>Cr und <sup>54</sup>Fe bei 94 MeV mit 1,9 μm Degrader-Folie und ESA. Messung zur Bestimmung der Isobarentrennung von <sup>53</sup>Cr bei der (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Messung. Das Isobarentrennungsvermögen ist *U*=1,81 bei Verwendung des 17<sup>+</sup> Ladungszustandes. Die Tails der <sup>54</sup>Cr Verteilungen zu niedrigen Energien reduzieren die Isobarentrennung, siehe logarithmische Darstellung der 17<sup>+</sup> Komponenten. Sie können durch die Messung von <sup>54</sup>Cr nach <sup>54</sup>Fe in kurzem zeitlichen Abstand durch einen <sup>54</sup>Fe Untergrund resultieren oder durch Aberrationen des QQDQQ-Systems [134].

ten bei den Werten der elektrischen Feldstärke der Intensitätsmaximas.

Die Messung der Isobarenunterdrückung bei der (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Messung wurde über die Messung von <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr durchgeführt. Durch die Verwendung der 1 mm breiten Schlitzblende vor dem Detektor kann die Faltung der wahren Energie/Ladungsverteilung mit einer Rechteckfunktion vernachlässigt werden, da diese für kleine Breiten gegen die wahre Verteilung konvergiert.

$$\lim_{b \to 0} \left( (f * g)(x) \right) = f(x)$$
$$(f * g)(x) = \int_{\mathbb{R}} f(\tau)g(x - \tau)d\tau$$
$$\lim_{b \to 0} g(x) = \lim_{b \to 0} \left( \Theta(x + \frac{b}{2}) - \Theta(x - \frac{b}{2}) \right) = \delta(x)$$

1

Das Resultat der Messung mit einer 1,9 µm Degrader-Folie bei einer Ionenenergie von 94 MeV mit optimaler Fokussierung für die <sup>54</sup>Fe Ladungszustände ist in Abb. 38 gezeigt. Die Intensitätsverteilung der Detektorereignisse ist für die stärkste Ladungszustandskomponente auf die Höhe 1 normiert. Die <sup>54</sup>Cr Zählrate war erwartungsgemäß gering.

Die Ladungszustände können über die elektrische Steifigkeit eindeutig identi-



Abbildung 39.: Relative Energieverlust-Differenz von <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr. Gemessen wurde die Energieverteilung mit einem Silizium-Detektor nach dem ESA, bei einer initialen Energie von 94 MeV. Die Ionenstrahlen <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr wurden nach dem Durchgang durch eine 1,9 µm Degrader-Folie vor dem ESA auf einen Silizium-Detektor hinter dem ESA fokussiert,  $|\vec{E}(^{54}Fe)|=2,587$  MV/m und  $|\vec{E}(^{54}Cr)|=2,644$  MV/m. Der relative Energieunterschied ist *D*=1,8 MeV.

fiziert werden. Nach dem Durchgang durch die 1,9 µm Degrader-Folie haben die Ionen eine Restenergie von 76,9(1) MeV für <sup>54</sup>Fe und 78,6(1) MeV für <sup>54</sup>Cr. Die Energieverlust-Differenz ist D=1,7(1) MeV. Die theoretische Energieverlust-Differenz ist  $D_{\text{theo}}=1,42$  MeV. Das gemessene Energiestraggling in der Degrader-Folie beträgt  $\Omega_{\text{st}}=0,32(2)$  MeV. Das berechnete Energiestraggling geht von der gemessenen Energieverteilung vor der Degrader-Folie aus,  $\Omega_{\text{ini}}=0,24(1)$  MeV, und liegt mit  $\Omega_{\text{st,theo}}=0,29$  MeV in guter Übereinstimmung mit den berechneten Werten. Ein Unterschied wird durch das Winkelstraggling erzeugt. Der resultierende Untergrund kann durch die Schlitze vor dem ESA begrenzt werden. Das resultierende Isobarentrennungsvermögen ist U=1,81 bei Verwendung des 17<sup>+</sup> Ladungszustandes.

Zwischen den Ladungszuständen  $21^+$  und  $20^+$  ist im <sup>54</sup>Fe Spektrum eine (E/q)-Interferenz zu erkennen. Die Flanken der <sup>54</sup>Cr Komponente zu höheren Energien können durch eine <sup>54</sup>Fe Kontamination erklärt werden. Das System wurde mit <sup>54</sup>Fe optimiert, danach wurde nur die Probe in der Ionenquelle gewechselt. Ein Memory-Effekt ist sehr wahrscheinlich. Eine weitere Ursache können Aberrationen des QQDQQ-Systems sein [134], die durch je einen Sextupol vor und einen nach dem ESA kompensiert werden könnten [136].

Insgesamt wird ein normalisierter Isobarentrennungsfaktor für <sup>54</sup>Cr von 10<sup>3</sup> erreicht mit einer Transmission von 78% der <sup>54</sup>Fe<sup>17+</sup> Komponente. Bei der Berechnung wurden gaußförmige Intensitätsverteilungen angenommen und der Untergrund beider Nachbarkomponenten berücksichtigt. Die beobachteten Ladungszustandsverteilungen sind in guter Übereinstimmung mit den theoretischen Werten nach Sayer [35].

Aus dieser gemessenen Isobarentrennung kann die Isobarentrennung bei den  $(^{53}Mn)^{55}Mn)$ - und  $(^{60}Fe/Fe)$ -Messungen mit 100 MeV bestimmt werden, siehe Ka-



Abbildung 40.: Messung des Isobarentrennungsvermögens mit Degrader-Folie und Timeof-Flight-System. Die gemessene Flugzeit des <sup>54</sup>Fe und des <sup>54</sup>Cr Ionenstrahls mit 100 MeV ist 211,4 ns für die Flugstrecke von 399,67 cm. Durch die Abbremsung in einer 2,1 µm SiN-Degrader-Folie ist die Flugzeit für <sup>54</sup>Cr 231,9 ns und für <sup>54</sup>Fe 234,5 ns. Das Isobarentrennungsvermögen ist *U*=2,1 für gaußförmige Verteilungen. Die Tails zu niedrigen Energien reduziert den normalisierten Isobarentrennungsfaktor für <sup>54</sup>Cr auf  $U_n=5147/251=20$  und für <sup>54</sup>Fe auf  $U_n=4939/4=1234$ , für rROI=FWHM.

pitel 1.5.1. Die Isobarentrennung von <sup>53</sup>Cr, bei Verwendung einer 4,77 µm Degrader-Folie und des 16<sup>+</sup> Ladungszustandes, ist 10<sup>3</sup> bei einer Transmission von 44%. Das Isobarentrennungsvermögen ist U=1,56. Der normalisierter Isobarentrennungsfaktor für <sup>60</sup>Ni, bei Verwendung einer 3,19 µm Degrader-Folie und des 17<sup>+</sup> Ladungszustandes, ist 10<sup>3</sup> bei einer Transmission von 86%. Das Isobarentrennungsvermögen ist U=1,95.

Jede Ladungszustandskomponente wurde über das Energiespektrum des Silizium-Detektors einzeln überprüft. Durch eine Gegenüberstellung der <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr Energien in den Intensitätsmaximas der ESA-Verteilungen kann die Energieverlust-Differenz überprüft werden, siehe Abb. 39. Gemessen wurde die Energieverteilung bei einer initialen Energie von 94 MeV. Die Ionenstrahlen <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr wurden mit einer 1,9 µm Degrader-Folie vor dem ESA auf den Silizium-Detektor fokussiert,  $|\vec{E}(^{54}\text{Fe})|=2,587 \text{ MV/m}$  und  $|\vec{E}(^{54}\text{Cr})|=2,644 \text{ MV/m}$ . Der relative Energieunterschied ist D=1,8 MeV.

# 3.6. Isobarentrennung mit Degrader-Folie und ToF-System

Die Messung des Isobarentrennungsvermögens und des normalisierten Isobarentrennungsfaktors mit Degrader-Folie und Time-of-Flight-System wurde mit <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr bei einer Energie von 100 MeV durchgeführt, unter Verwendung des 10<sup>+</sup> Ladungszustandes. Die Kohlenstofffolien der Start- und Stop-Detektoren standen bei dieser Messung parallel zueinander. Für die Messung wurde der elektrisch messbare Ionenstrahl auf den Faraday-Cup vor dem ToF-Start-Detektor fokussiert. Mit dem Quadrupol-Triplett in der Flugstrecke des ToF-Systems wurde der Ionenstrahl auf den Faraday-Cup vor dem ToF-Stop-Detektor fokussiert. Die Spannungen des ToF-Systems waren dabei noch nicht eingeschaltet. Die Energie des Ionenstrahls wurde mit dem Silizium-Detektor nach dem ESA überprüft. Da der Massenunterschied von 54Fe und 54Cr mit dem Hochenergie-Massenspektrometer nicht aufgelöst wird, kann durch Wechseln des Probenmaterials zwischen den Isotopen gewechselt werden. Um die Messung der Flugzeiten zu ermöglichen, wurde die Ionisierertemperatur reduziert, bis der Ionenstrom auf dem Faraday-Cup elektrisch nicht mehr messbar war. Gemessen wurden zunächst die Flugzeiten der ungebremsten <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr Ionen, wodurch die Flugstrecke kalibriert werden konnte. Es resultiert bei einer Flugzeit von 211,4 ns eine Flugstrecke von L=399,67 cm, siehe Abb. 40. Die Auflösung ist 700 ps, bei einer intrinsischen Zeitauflösung von 246 ps. Durch eine 2,1 µm SiN-Degrader-Folie wird <sup>54</sup>Fe auf eine Flugzeit von 234,5 ns und <sup>54</sup>Cr auf eine Flugzeit von 231,9 ns abgebremst. Das Energiestraggling und Winkelstraggling verursacht eine Verbreiterung des Zeitsignals auf eine Halbwertsbreite von W=1,3 ns. Die zeitliche Trennung von <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr ist D=2,6 ns. Bei der Annahme von gaußförmigen Verteilungen resultiert ein Isobarentrennungsvermögen von U=2,1. Die Tails zu niedrigen Energien reduzieren den normalisierten Isobarentrennungsfaktor. Für die <sup>54</sup>Cr Unterdrückung folgt mit  $U_n=5147/251=20$  ein geringerer normalisierter Isobarentrennungsfaktor als für die <sup>54</sup>Fe Unterdrückung mit  $U_n$ =4939/4=1234. Dabei wurde die rROI gleich der Halbwertsbreite gewählt. Die Verteilungen werden durch die Landau-Vavilov-Verteilung gut beschrieben, wodurch eine Untergrundkorrektur möglich wird.

# 3.7. Isobarentrennung mit Gasionisationsdetektor

Die abschließende Isobarentrennung am Ende des Hochenergie-Massenspektrometers erfolgt mit einem Gasionisationsdetektor. Es wurden hier zwei verschiedene Typen von Gasionisationsdetektoren getestet: ein 2-Anoden-Gasionisationsdetektor und ein Bragg-Detektor.

# 3.7.1. 2-Anoden-Gasionisationsdetektor

Hauptsächlich werden bei AMS-Messungen Gasionisationsdetektoren mit mehreren Anoden zur Messung des elektrischen Signals des differentiellen Energieverlustes verwendet. Die Spektren sind einfach zu verstehen und über eine vielfach Anodensegmentierung können mehrdimensionale Energieverlustbedingungen (Gates) gesetzt werden um den Untergrund zu reduzieren. Die Segmente sollten optimal an den Verlauf des differentiellen Energieverlustes angepasst sein, so dass ein maximal unterschiedliches Signal produziert wird, je nach Kernladungszahl, vgl. [159]. Ein Gasionisationsdetektor mit zwei Anoden kann nur eine optimale Trennung liefern, wenn der richtige Gasdruck eingestellt, ist und die Überschneidung der differentiellen Energieverlustsignale an der richtigen Stelle liegt. Bei zu





(a) **Zu 2)** <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr mit einer Energie von 100 MeV durch 2 µm SiN-Degrader-Folie **nach ESA**.  $\overline{U}$ =4,9 bei 140 mbar Detektordruck, siehe Tab. 13.

(b) Zu 3a) <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr mit einer Energie von 100 MeV durch 2 μm SiN-Degrader-Folie vor und nach ESA. Ū=5,1 bei 110 mbar Detektordruck, siehe Tab. 14.

Abbildung 41.: Detektorauflösung bei verschiedenen Gasdrücken. Die Auflösung für die verschieden Drücke wurden im Differenzspektrum bestimmt,  $\Delta E_1$ - $\Delta E_2$ +*Range*. Dies entspricht der Projektion der Messpunkte auf eine Diagonale, wodurch die Auflösung bei Unterschieden im Summenspektrum  $\Delta E_1$ + $\Delta E_2$  unterschätzt wird.

niedrigen Gasdrücken ist eine gute Trennung möglich, jedoch werden die Ionen nicht im aktiven Volumen gestoppt und können an Detektorbauteilen streuen und einen Untergrund verursachen.

Für den Betrieb des 2-Anoden-Gasionisationsdetektors wurden drei verschiedene Ioneneinschüsse getestet, ausgehend von <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr mit 100 MeV im 10<sup>+</sup> Ladungszustand. Eine weitere Messreihe wurde mit <sup>58</sup>Fe und <sup>58</sup>Ni mit 100 MeV im 10<sup>+</sup> Ladungszustand in der dritten Konfiguration gemessen.

- 1. ohne passiven Absorber
- 2. 2 µm SiN-Degrader-Folie nach dem ESA
- 3. 2 µm SiN-Degrader-Folie vor und nach dem ESA
  - a)  ${}^{54}$ Fe und  ${}^{54}$ Cr
  - b)  ${}^{58}$ Fe und  ${}^{58}$ Ni

Die Auflösung und das mittlere Isobarentrennungsvermögen wurden im Differenzspektrum berechnet. Dies entspricht der Projektion der Messpunkte auf eine Diagonale  $\Delta E_1$ - $\Delta E_2$ +*Range*, wodurch das Isobarentrennungsvermögen bei Unterschieden im Summenspektrum  $\Delta E_1$ + $\Delta E_2$  unterschätzt wird. Die Auflösung wurde aus den Schwerpunkten und den Halbwertsbreiten,  $W_1$  und  $W_2$ , bestimmt.

Bei der Beurteilung der Detektorspektren ist zu berücksichtigen, dass ein 0,5 µm SiN-Fenster zum Eintritt der Ionen in den Detektor eingebaut ist, und auch dort ein Energieverlust stattfindet. Die Detektorspannung von 430 V wurde bei den Messungen nicht verändert.

**Zu 1)** Die beste Detektorauflösung **ohne einen passiven Absorber** vor dem Gasionisationsdetektor wurde bei einem Gasdruck von 175 mbar mit 2,7% gemessen.

Tabelle 12.: **Zu 1**) Detektorauflösung und mittleres Isobarentrennungsvermögen ohne einen passiven Absorber vor dem Gasionisationsdetektor. Gemessen wurde <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr mit einer Energie von 100 MeV. Gasdrücke unter 115 mbar sind nicht ausreichend, um die Ionen im aktivem Volumen des Detektors zu stoppen. Die Auflösung bei verschieden Drücken wurde im Differenzspektrum bestimmt. Dies entspricht der Projektion der Messpunkte auf eine Diagonale, wodurch die Auflösung bei Unterschieden im Summenspektrum  $\Delta E_1 + \Delta E_2$  unterschätzt wird.  $W_1$  und  $W_2$  sind die Halbwertsbreiten.

Druck [mbar]	$X_1$	<sup>54</sup> Cr W <sub>1</sub>	Res.	X2	<sup>54</sup> Fe W <sub>2</sub>	Res.	$D = X_2 - X_1$	Ū
115	454,5	20,1	4,4	494,4	18,0	3,6	39,9	2,10
125	487,2	15,4	3,2	546,7	19,9	3,6	59,5	3,36
135	532,4	18,9	3,5	607,8	21,2	3,5	75,4	3,77
145	591,7	20,0	3,4	677,8	21,8	3,2	86,1	4,12
155	650,1	21,8	3,4	744,6	22,6	3,0	94,5	4,26
<b>165</b>	707,0	22,3	3,1	805,8	22,7	2,8	98,8	<b>4,40</b>
175	768,5	22,5	2,9	865,2	23,1	2,7	96,6	4,24

Das höchste mittlere Isobarentrennungsvermögen von <sup>54</sup>**Fe** und <sup>54</sup>**Cr** wurde bei einem Druck von 165 mbar erreicht  $\overline{U}$ =4,4, siehe Tab. 12. Unter 115 mbar wurden die Ionen nicht im aktiven Volumen gestoppt und haben starke Streuungen im Detektor erzeugt. Es entstanden Nebenpeaks mit einer geringeren Gesamtenergie, die durch Streuung an der Aufhängung der Kathode erzeugt wurden. Sie entstehen durch einen Bereich neben der Halterung, in den die Ionen hinein gelangen können, und weitere Ionisationen verursachen, die an der Anode gemessen werden können.

Zu 2) Die beste Detektorauflösung mit einer 2 µm SiN-Degrader-Folie vor dem Gasionisationsdetektor wurde bei einem Gasdruck von 155 mbar mit 2,1% gemessen. Das höchste mittlere Isobarentrennungsvermögen von <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr wurde bei einem Druck von 140 mbar erreicht  $\overline{U}$ =4,9, siehe Tab. 13. Unter 95 mbar wurden die Ionen nicht im aktiven Volumen gestoppt und haben starke Streuungen im Detektor erzeugt. Bei der Messung mit 95 mbar wird deutlich, dass nicht die gesamte Energie im aktiven Volumen deponiert wird, da die Summenenergie geringer ist als bei der Messung mit 125 mbar. Die Summenenergie der Messung mit 155 mbar lässt vermuten, dass es einen Bereich am Anfang des Detektors gibt, der bei höheren Drücken höheren Energieverlust verursacht und die Ionisationen in diesem Bereich nicht als elektrisches Signal verarbeitet werden. Eine weitere Möglichkeit sind Rekombinationen im Streufeld des Eintrittsfensters.

**Zu 3a)** <sup>54</sup>**Fe** und <sup>54</sup>**Cr** Messung mit einer **2** μ**m SiN-Degrader-Folie vor dem ESA** und einer **2** μ**m SiN-Degrader-Folie vor dem Gasionisationsdetektor**. Die beste Detektorauflösung wurde bei einem Gasdruck von 125 mbar mit 1,2% gemessen. Für diese Messung wurde der ESA auf ein elektrisches Feld zwischen den beiden Hauptkomponenten gestellt, so dass die Isobare den zweiten Absorber mit gleicher

l ni	cht ausrei	chend,	um die	Ionen	im aktiv	vem Vo	lumen	des Detekto	rs zu st	op
	Druck		<sup>54</sup> Cr			<sup>54</sup> Fe		$D = Y_{a-}Y_{a}$	Π	
	[mbar]	<i>X</i> <sub>1</sub>	$W_1$	Res.	<i>X</i> <sub>2</sub>	$W_2$	Res.	$D = X_2 = X_1$	u	
	95	484,6	19,9	4,1	533,7	17,8	3,3	49,1	2,60	
	100	501,0	17,9	3,6	561,0	18,6	3,3	60,0	3,29	
	110	521,6	17,7	3,4	593,7	19,2	3,2	72,1	3,91	
	115	545,3	18,0	3,3	626,6	19,8	3,2	81,3	4,30	
	120	574,6	18,9	3,3	662,3	20,2	3,0	87,7	4,49	
	125	603,1	19,9	3,3	694,8	20,4	2,9	91,7	4,56	
	130	633,0	20,2	3,2	727,9	20,3	2,8	94,9	4,69	
	135	661,0	20,2	3,1	758,1	20,0	2,6	97,1	4,83	
	140	693,4	20,5	3,0	791,6	19,6	2,5	98,2	4,90	
	145	723,4	20,8	2,9	820,5	18,9	2,3	97,2	4,89	

Tabelle 13.: **Zu 2**) Detektorauflösung und mittleres Isobarentrennungsvermögen mit einer 2 μm SiN-Degrader-Folie vor dem Gasionisationsdetektor als passiver Absorber. Gemessen wurde <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr mit einer Energie von 100 MeV. Gasdrücke unter 95 mbar sind nicht ausreichend, um die Ionen im aktivem Volumen des Detektors zu stoppen.

Energie erreichen. Die Zählrate der beiden Isobare waren bei einem elektrischen Feld von 2,6 MV/m gleich groß. Das höchste mittlere Isobarentrennungsvermögen von <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr wurde bei einem Druck von 110 mbar erreicht  $\overline{U}$ =5,1, siehe Tab. 14. Unter 70 mbar wurden die Ionen nicht im aktiven Volumen gestoppt.

845,6

870,6

18,3

17,9

2,2

2,1

93,1

86,8

4,82

4,58

150

155

752,5

783,7

20,4

20,1

2,7

2,6

Zu 3b) <sup>58</sup>Fe und <sup>58</sup>Ni Messung mit einer 2 µm SiN-Degrader-Folie vor dem ESA und einer 2 µm SiN-Degrader-Folie vor dem Gasionisationsdetektor. Die beste Detektorauflösung wurde bei einem Gasdruck von 110 mbar mit 1,1% gemessen. Für diese Messung wurde der ESA auf ein elektrisches Feld zwischen den beiden Hauptkomponenten gestellt, so dass die Isobare den zweiten Absorber mit gleicher Energie erreichen. Die Zählrate der <sup>58</sup>Fe Komponente lag bei ca. 20% der <sup>58</sup>Ni Rate. Das höchste mittlere Isobarentrennungsvermögen von <sup>58</sup>Fe und <sup>58</sup>Ni wurde bei einem Druck von 90 mbar erreicht  $\overline{U}$ =4,1 und ist, wie erwartet, geringer als bei der Messung von <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr, siehe Tab. 15. Unter 70 mbar wurden die Ionen nicht im aktiven Volumen gestoppt.

Zur Bestimmung des mittleren Isobarentrennungsvermögens für <sup>53</sup>Mn und <sup>53</sup>Cr wurde <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr gemessen und die <sup>54</sup>Mn Intensität interpoliert. Die Ionen mit einer Energie von 100 MeV wurden durch zwei passive Absorber, 2 µm SiN-Degrader-Folie vor dem ESA und eine 2 µm SiN-Degrader-Folie vor dem Gasionisationsdetektor abgebremst. Gemessen wurde bei 90 mbar Detektordruck. Im Differenzspektrum wird das mittlere Isobarentrennungsvermögen mit  $\overline{U}$ =5,08 durch die Summation auf der Diagonalen unterschätzt. Das richtige mittlere Isobarentrennungsvermögen wird durch die Intensität auf der Verbindungsgeraden der Verteilung mit dem geringsten Abstand *D* bestimmt, siehe Abb. 42a. Da die Berechnung des Querschnitts über die Mittelung der Kanäle in der Schnittbreite erfolgt, ist der Untergrund nicht geeignet, um den Isobarentrennungsfaktor zu berechnen, Tabelle 14.: **Zu 3a**) Detektorauflösung und mittleres Isobarentrennungsvermögen mit einer 2 μm SiN-Degrader-Folie vor dem ESA und einer 2 μm SiN-Degrader-Folie vor dem Gasionisationsdetektor als passive Absorber. Gemessen wurde <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr mit einer Energie von 100 MeV. Der ESA wurde auf ein elektrisches Feld von 2,6 MV/m gesetzt, so dass die Isobare den zweiten Absorber mit gleicher Energie erreichen. Gasdrücke unter 70 mbar sind nicht ausreichend, um die Ionen im aktiven Volumen des Detektors zu stoppen.

Druck [mbar]	$X_1$	<sup>54</sup> Cr W <sub>1</sub>	Res.	X <sub>2</sub>	<sup>54</sup> Fe W <sub>2</sub>	Res.	D= $X_2$ - $X_1$	Ū
70	505,3	18,3	3,6	559,1	16,1	2,9	53,8	3,12
75	522,7	16,7	3,2	585,1	16,4	2,8	62,4	3,77
80	569,0	16,1	2,8	647,6	16,5	2,6	78,6	4,81
90	631,7	16,8	2,7	712,8	15,2	2,1	81,1	5,08
105	660,1	16,7	2,5	739,7	14,3	1,9	79,6	5,14
110	689,1	16,5	2,4	765,8	13,3	1,7	76,7	5,15
115	718,0	16,1	2,2	790,1	12,1	1,5	72,1	5,11
120	746,2	15,6	2,1	811,2	11,0	1,4	65,0	4,90
125	770,5	14,8	1,9	827,2	9,9	1,2	56,6	4,59

Tabelle 15.: **Zu 3b)** Detektorauflösung und mittleres Isobarentrennungsvermögen mit einer 2 μm SiN-Degrader-Folie vor dem ESA und einer 2 μm SiN-Degrader-Folie vor dem Gasionisationsdetektor als passive Absorber. Gemessen wurde <sup>58</sup>Fe und <sup>58</sup>Ni mit einer Energie von 100 MeV. Der ESA wurde auf ein elektrisches Feld von 2,6 MV/m gesetzt, so dass die Isobare den zweiten Absorber mit gleicher Energie erreichen.

Druck [mbar]	$X_1$	<sup>58</sup> Fe W <sub>1</sub>	Res.	X <sub>2</sub>	<sup>58</sup> Ni W <sub>2</sub>	Res.	$D = X_2 - X_1$	Ū
70	540,5	16,3	3,0	591,3	16,1	2,7	50,8	3,13
80	595,5	15,6	2,6	654,4	15,3	2,3	58,9	3,82
<b>90</b>	656,6	15,1	2,3	713,9	13,0	1,8	57,3	<b>4,08</b>
100	715,9	14,0	2,0	762,1	10,7	1,4	46,2	3,74
110	766,6	11,5	1,5	800,8	8,9	1,1	34,2	3,35



(a) <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr mit einer Energie von 100 MeV durch **2** µm SiN-Degrader-Folie vor und nach dem ESA. Isobarentrennungsvermögen im Differenzspektrum bei 90 mbar Detektordruck ist  $\overline{U}$ =5,08.



(b) Querschnitt in (a). Berechnet wurde die Intensität auf der Verbindungsgeraden mit dem geringsten Abstand *D*. Das Isobarentrennungsvermögen ist  $\overline{U}$ =5,2. Die <sup>54</sup>Mn Intensität wurde interpoliert.

Abbildung 42.: Isobarentrennungsvermögen des 2-Anoden-Gasionisationsdetektors im Differenz- und Querschnittsspektrum. Die Trennung der Isobare <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr ist im Querschnitt *D*=72,4. Die Halbwertsbreiten sind *W*<sub>Cr</sub>=14,6 und *W*<sub>Fe</sub>=13,2. Das mittlere Isobarentrennungsvermögen ist mit  $\overline{U}$ =5,2 höher als im Differenzspektrums mit  $\overline{U}$ =5,08. Das erwartete mittlere Isobarentrennungsvermögen von <sup>54</sup>Mn kann durch Interpolation bestimmt werden  $\overline{U}$ =2,6.

siehe Abb. 42b. Das mittlere Isobarentrennungsvermögen kann aus *D*=72,4 und den Halbwertsbreiten  $W_{Cr}$ =14,6 und  $W_{Fe}$ =13,2 bestimmt werden,  $\overline{U}$ =5,2. Das erwartete mittlere Isobarentrennungsvermögen von <sup>54</sup>Mn kann durch Interpolation bestimmt werden  $\overline{U}$ =2,6.

Ein Test mit einem Silizium-Detektor mit einem Durchmesser von ca. 1 cm am Ende des Gasvolumens des Gasionisationsdetektors hat gezeigt, dass der Tail zu niedrigen Energien auf Anode eins durch Ionen mit hoher Winkeldispersion erzeugt wird. Bei Messungen mit koinzidenten Ereignissen von Anode eins, von Anode zwei und dem Silizium-Detektor wurden keine Ereignisse des Tails gemessen.

# 3.7.2. Bragg-Detektor

Das Isobarentrennungsvermögen eines Gasionisationsdetektors ist entscheidend abhängig von der Anodensegmentierung und dem Gasdruck. Bei einem Bragg-Detektor kann das Analogon der Segmentierung, die Shaping-Time, frei gewählt werden, wodurch das System einfach optimiert werden kann. Die Abhängigkeit vom Gasdruck bleibt bestehen, da dieser großen Einfluss auf den differentiellen Energieverlust hat.

Gemessen wurde <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr mit einer Energie von 100 MeV ohne passiven Absorber bei drei verschiedenen Shaping-Times  $t_s$ =0,08 µs, 0,3 µs und 0,5 µs, siehe



Abbildung 43.: Bestimmung der Auflösung und des mittleren Isobarentrennungsvermögens bei einem Gasdruck von 126 mbar und einer Shaping-Time von 0,3 µs. Die Auflösung ist 1,36%. Das mittlere Isobarentrennungsvermögen von <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr ist  $\overline{U}$ =4,1. Die Tails entfernen sich von den Isobaren.

Tab. 16. Die Dicke des Eintrittsfensters ist 0,5 µm. Die Auflösung und das mittlere Isobarentrennungsvermögen wurden im Spektrum der kürzeren Shaping-Time bestimmt, in dem der unterschiedliche differentielle Energieverlust sichtbar wird, siehe Ordinate der Abb. 43.

Die beste Detektorauflösung wurde bei einem Gasdruck von 163 mbar mit 1,29%, mit einer Shaping-Time von 0,5 µs, gemessen. Das höchste mittlere Isobarentrennungsvermögen von <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr wurde bei einem Druck von 126 mbar erreicht  $\overline{U}$ =4,1, bei einer Auflösung von 1,39%, siehe Abb. 43.

$t_s$	Druck	<sup>54</sup> Cr	<sup>54</sup> Fe		Res	$D = X_{2} - X_{1}$	Π
[µs ]	[mbar]	$X_1$	<i>X</i> <sub>2</sub>	$W_{1/2}$	100.		<u>u</u>
0,08	116	1789	1912	31,5	1,65	123	3,9
	126	1820	1939	30	1,55	119	4,0
	136	1840	1953	29,4	1,51	113	3,8
	142	1855	1967	30,5	1,55	112	3,7
	163	1835	1932	31,5	1,63	97	3,1
0,3	116	1585	1683	25,4	1,51	98	3,9
	126	1610	1704	23,2	1,36	94	4,1
	136	1624	1713	26	1,52	89	3,4
	142	1638	1725	25,7	1,49	87	3,4
	163	1616	1692	24,2	1,43	76	3,1
0,5	142	2204	2300	33,5	1,46	96	2,9
	163	2171	2255	29,2	1,29	84	2,9

Tabelle 16.: Bragg-Detektorauflösung und mittleres Isobarentrennungsvermögen ohne passiven Absorber. Gemessen wurde <sup>54</sup>Fe und <sup>54</sup>Cr mit einer Energie von 100 MeV.

Ein großen Unterschied in den Spektren des 2-Anoden-Gasionisationsdetektors und des Bragg-Detektors zeigen die Verläufe der Tails. Beim 2-Anoden-Gasionisationsdetektor gehen Streuungen der <sup>54</sup>Cr Komponente bei gleicher Gesamtenergie in Richtung der <sup>54</sup>Fe Komponente. Beim Bragg-Detektorspektrum sind ähnliche



Abbildung 44.: PXAMS Aufbau. Der für die ersten Test-Messungen entwickelte Projektil X-Ray AMS-Aufbau zur Messung des erreichbaren Isobarentrennungsvermögens. Der Silicon Drift Detector mit einer Detektorfläche von 10 mm<sup>2</sup>, XFlash 2001 von Röntec, steht unter 90° zur Solbahn. Vor den Detektor wurde eine Goldfolie gespannt. Der Silizium-Detektor steht unter 45° zur Sollbahn und kann aus dem Strahlengang gefahren werden.

Tails zu erkennen, die von den Verteilungen weggerichtet sind, und einen geringeren Untergrund zur Komponente mit höherer Kernladungszahl erzeugen. Besonders von Vorteil ist diese Eigenschaft bei der Messung von (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Verhältnissen, da dort die relative Kernladungszahldifferenz gering ist. Problematisch ist die Optimierung des Systems, da momentan keine Synchrondarstellung der zweidimensionalen Spektren möglich ist. Sie müssen erst aus den List-Mode-Daten erstellt werden.

# 3.8. Projektil X-Ray AMS

Der für die ersten Test-Messungen entwickelte Projektil X-Ray AMS-Aufbau ermöglicht die Messung des erreichbaren Isobarentrennungsvermögens und sollte zudem genutzt werden, um X-Ray Erträge (Yields) zu bestimmen. Der Messaufbau besteht aus einem Silicon Drift Detector (SDD), XFlash 2001 von Röntec [128], mit einer aktiven Detektorfläche von 10 mm<sup>2</sup> und einer Goldfolie mit 1,5 mg/cm<sup>2</sup>, die vor einen Silizium-Detektor befestigt ist, welcher um 45° relativ zur Sollbahn gedreht ist, und aus dem Strahlengang gefahren werden kann, siehe Abb. 44. Die Messungen mit dem Projektil X-Ray Aufbau wurden am Messplatz V in einem Messwürfel hinter dem Hochenergie-Massenspektrometer durchgeführt, siehe Abb. 27.

Der SDD wird bei -20°C betrieben und hat eine angegebene Energieauflösung von 123 eV für den  $K_{\alpha}$  Übergang von Mn bei einer Zählrate von bis zu 100 kHz. Für den  $M_{\alpha}$  Übergang von Au wurde hier eine Auflösung von 324(8) eV erreicht. Eine Beschreibung der Funktionsweise des verwendeten SDD ist bei Lechner et al. [160] zu finden. Diese Art von Detektoren werden z.B. bei der energiedispersiven Röntgenspektroskopie (EDS) verwendet.



Abbildung 45.: PXAMS Messung der  $K^*_{\alpha}$  und  $K^*_{\beta}$  Übergänge von <sup>55</sup>Mn und <sup>53</sup>Cr. Das erreichte mittlere Isobarentrennungsvermögen von <sup>53</sup>Mn und <sup>53</sup>Cr ist  $\overline{U}$ =3,42±0,07. Unter Berücksichtigung des Beitrags aus der  $K^*_{\beta}$ -Linie von <sup>53</sup>Cr ist der normalisierte Isobarentrennungsfaktor  $U_n$ =9,9±0,2.

Die Geometrie des Aufbaus wurde so gewählt, dass keine Doppler-Korrekturen der Energiespektren notwendig werden. Für einen hohen X-Ray Yield wurde als Targetmaterial Gold gewählt, da es eine hohe Kernladungszahl hat. Zuvor wurde der relative X-Ray Yield der Projektil-Ionen bei der Verwendung von Wolfram (Z=74) und Gold (Z=79) an einem Testaufbau in der PIXE-Kammer im Strahlrohr L30 gemessen. Die Dicke der Goldfolie ist so gewählt, dass die Projektil-Ionen noch in den Silizium-Detektor eindringen können. Für <sup>55</sup>Mn bei 100 MeV ist der Energieverlust 16,9 MeV. Durch die gleichzeitige Messung der charakteristischen Röntgenstrahlung des Targetmaterials, deren Energien den Literaturwerten entsprechen, da die Übergänge im nicht hoch ionisierten Atom entstehen, kann das Detektorspektrum über die Energien  $M_{\alpha}$ =2,12 keV,  $L_{\alpha}$ =9,71 keV und  $L_{\beta}$ =11,44 keV kalibriert werden.

Es wurden die Übergänge  $K^*_{\alpha}$  und  $K^*_{\beta}$  der Isotope <sup>53</sup>Cr, <sup>55</sup>Mn, <sup>56</sup>Fe, <sup>58</sup>Ni bei Energien um 100 MeV im 10<sup>+</sup> Ladungszustand gemessen, siehe Tab. 17.

Die X-Ray Energien aller hier gemessenen  $K^*_{\alpha}$  und  $K^*_{\beta}$  Übergänge weichen durch den mittleren Ladungszustand der Projektile deutlich von den Literaturwerten der  $K_{\alpha}$  und  $K_{\beta}$  Übergänge ab, siehe Tab. 17. Mit den Halbwertsbreiten der  $L^*_{\alpha}(Au)$ -Linie von 324(8) eV und der  $K^*_{\alpha}(Mn)$  von 380(6) folgt eine Dopplerverbreiterung von 198(17) eV, siehe Abb. 45. Die Linienverbreiterung durch die Geometrie zum Mittel-

<sup>A</sup> Z Ionenenergie		Gemessene X-Ray Energie [eV]	Literaturwerte Energie [eV]	Differenz [eV]	FWHM [eV]	$\begin{array}{c} Y_{lpha/eta} \ (Y_{M_{lpha}}) \end{array}$
<sup>197</sup> <sub>79</sub> Au	$M_lpha\ L_lpha\ L_eta$	- -	2122,9 <sup>b</sup> 9713,3 <sup>b</sup> 11 442,3 <sup>b</sup>	- -	$324(8)^c$ -603(26) <sup>d</sup> $345(5)^c$ -499(6) <sup>e</sup> $938(31)^c$ -1237(103) <sup>d</sup>	100 69,3(7) 35,6(6)
<sup>53</sup> Cr 100,55 MeV <sup>55</sup> Mn 100,46 MeV <sup>56</sup> Fe 99,57 MeV <sup>58</sup> Ni 99,68 MeV	$\begin{array}{c} K^*_{\alpha} \\ K^*_{\beta} \\ K^*_{\alpha} \\ K^*_{\beta} \\ K^*_{\alpha} \\ K^*_{\alpha} \\ K^*_{\beta} \end{array}$	$5494(2) \\6238(8) \\5926(2) \\6743(8) \\6379(10) \\7231(78) \\7440(10) \\8549(45)$	5414,81 <sup><i>a</i></sup> 5946,82 <sup><i>a</i></sup> 5898,80 <sup><i>a</i></sup> 6490,18 <sup><i>a</i></sup> 6404,01 <sup><i>a</i></sup> 7058,18 <sup><i>a</i></sup> 7478,26 <sup><i>a</i></sup> 8264,78 <sup><i>a</i></sup>	79(2) 291(8) 27(2) 253(8) $-25(10) 173(78) -38(10) 284(45)$	$511(6) \\826(41) \\380(6) \\265(36) \\558(35) \\761(292) \\622(32) \\948(164)$	$ \begin{array}{c} 100\\ 17,3(7)\\ 100\\ 12,6(6)\\ 100\\ 9(3)\\ 100\\ 12(2)\\ \end{array} $

Tabelle 17.: Gemessene Energien der X-Ray Emissionslinien. Literaturwerte (a) Hölzer et al. [117] und (b) nach Tompson et al. [118]. Die Halbwertsbreiten der Au Energien zu den Messungen: (c) <sup>55</sup>Mn-, (d) <sup>58</sup>Ni-, (e) <sup>53</sup>Cr-Messung. Yield  $K_{\alpha}$  zu  $K_{\beta}$  ( $Y_{\alpha/\beta}$ ) normalisiert auf die  $K_{\alpha}$ -Linie, bzw.  $L_{\alpha}(Au)$  und  $L_{\beta}(Au)$  normalisiert auf die  $M_{\alpha}$ -Linie ( $Y_{M_{\alpha}}$ ).

punktswinkel und die Abbremsung ist hierdurch berücksichtigt. Die Dopplerverbreiterung ist vergleichbar mit den Ergebnissen der  $L^*_{\alpha}$ (Hf) Messung von Winkler et al. [127]. Der relative Yield,  $K_{\alpha}$  zu  $K_{\beta}$  ( $Y_{\alpha/\beta}$ ) normalisiert auf die  $K_{\alpha}$ -Linie, bzw.  $L_{\alpha}(Au)$  und  $L_{\beta}(Au)$  normalisiert auf die  $M_{\alpha}$ -Linie ( $Y_{M_{\alpha}}$ ), weicht deutlich von den Literaturwerten ab. Eine Voraussage zum Isobarentrennungsvermögen mit den Literaturwerten der  $K_{\alpha}$  und  $K_{\beta}$  Übergänge ist deshalb nicht möglich. Die Messung der  $K^*_{\alpha}$  und  $K^*_{\beta}$  Übergänge von <sup>56</sup>Fe und <sup>58</sup>Ni ist in Anhang C in Abb. 50 dargestellt.

Das erreichte mittlere Isobarentrennungsvermögen von <sup>53</sup>Mn und <sup>53</sup>Cr, welches durch die Messung von <sup>55</sup>Mn und <sup>53</sup>Cr bestimmt wurde ist

$$\overline{U} = 3,42 \pm 0,07$$

Dies entspricht einem normalisierten Isobarentrennungsfaktor von  $U_n=10^3$  bei 60% Transmission. Durch den Beitrag aus der  $K_{\beta}^*$ -Linie von <sup>53</sup>Cr ist der tatsächliche normalisierte Isobarentrennungsfaktor deutlich reduziert.

$$U_n = 9,9 \pm 0,2$$

Der gemessene X-Ray Yield pro Projektil stimmt nicht mit den Literaturwerten überein, vgl. Proctor et al. [116]. Es wurden zu hohe Werte gemessen, was durch Rückstreuung der Projektile und die Totschicht des Detektors resultieren kann. Ebenso ist nicht ausgeschlossen, dass die Folie von den Projektilen getroffen wird, aber nicht das aktive Volumen des Detektors. Auf die Berechnung der Wirkungsquerschnitte nach der Merzbach-Lewis-Formel wurde daher verzichtet [115]. Für weitere Experimente müssen vor der Goldfolie Blenden verwendet werden. Es empfiehlt sich außerdem, die Projektilrate über die Rutherfordstreuung zu messen, vgl. Liarokapis und Zouros [161]. Die berechnete Transmission der  $K^*_{\alpha}(Mn)$  durch die verwendete Goldfolie mit 1,5 mg/cm<sup>2</sup> ist  $\approx$ 99%. Das mit dem Silizium-Detektor gemessene Energiespektrum der <sup>55</sup>Mn Ionen befindet sich im Anhang C in Abb. 51.

Die Messung der Projektil X-Rays lieferte hervorragende Informationen zur Ionenstrahldiagnose. Deshalb wurde ein neuer Aufbau in Betrieb genommen, bei dem die Goldfolie im 45°-Winkel direkt vor dem XFlash Detektor an dessen Lineardurchführung montiert wurde. Hierdurch ist es auf einfachste Weise möglich die Folie in den Ionenstrahl zu fahren und die Projektil X-Rays zu messen.

Tabelle 18.: Effizienz Messungen PXAMS. Die Detektionseffizienzen wurden bei einem Abstand des XFlash-Detektors zu dem Silizium-Detektor von 40(1) mm gemessen. Dies entspricht einem Raumwinkel von 0,00624(4) sr und einer Raumwinkelabdeckung von 0,05%. Der Silizium-Detektor und die Goldfolie stehen im 45°-Winkel zur Sollbahn.

Element	Silizium-	Dete	ektor	$N(K^*_{\alpha})$	Detektionseffizienz	z Yield
	Cou	nts			$[x10^{-5}]$	[X-Ray/Projektil]
<sup>53</sup> Cr	478.684	$\pm$	692	249±14	4,1±0,3	0,83±0,06
<sup>55</sup> Mn	1.333.436	$\pm$	366	$110{\pm}~9$	5,9±0,7	1,18±0,13
<sup>56</sup> Fe	467.062	$\pm$	683	$305{\pm}16$	5,8±0,4	1,17±0,07
<sup>58</sup> Ni	1.254.553	±	1.120	$894{\pm}31$	7,6±0,2	$1,54{\pm}0,06$

# 3.9. Transmissionstest mit <sup>54</sup>Fe

Die Transmission des AMS-Aufbaus wurde mit  ${}^{54}$ Fe ${}^{10+}$  bei 100 MeV getestet. Dabei wurden die Einflüsse der SiN-Degrader-Folien auf die Transmission untersucht. Die Ergebnisse sind in Abb. 46 dargestellt, sowie in Klammern die Nummern der Faraday-Cups. Verwendet wurde diese Art der Untersuchung, da noch keine Bestimmung über die Isotopenverhältnismessung, wie in [108] vorgeschlagen, möglich war. Die Transmissionen durch das Hochenergie-Massenspektrometer der später durchgeführten Isotopenverhältnismessungen von  ${}^{41}$ Ca lagen bei 16% bis 30% und die der  ${}^{53}$ Mn Messung bei 2% bis 10%.

Die Injektor-Transmission und die Sputter-Rate wurde von Richard Altenkirch im Rahmen seiner Promotion untersucht. Der Wert wurde durch eine Langzeitmessung aus dem elektrischen Strom im Injektor-Cup (1) und der Einwaage des Probenmaterials bestimmt. Es wurden 0,3% des <sup>55</sup>MnO<sub>2</sub> Materials als <sup>55</sup>MnO<sup>-</sup> Ionen im Injektor-Cup gemessen. Die mittlere Sputter-Rate lag bei 1 mg/h. Die Effizienz wird bei der Berechnung der fehlernormalisierten Sensitivität in Kapitel 1.4 berücksichtigt.

Die Transmission vom Injektor-Cup (1) bis zum Phönix-Cup (2) war bei allen Messungen 100%. Vom Phönix-Cup (2) bis zum NE-Cup (3) ist die Transmission im Durchschnitt 60%. Ein Transmissionsverlust auf Grund der geringen Vakuumkammerhöhe des 20°-Schaltmagneten wurde mit einem Faraday-Cup mit einem



Abbildung 46.: Transmissionstest mit <sup>54</sup>Fe bei 100 MeV im 10<sup>+</sup> Ladungszustand bei Verwendung einer 1,9 μm SiN-Degrader-Folie vor und einer 2,1 μm SiN-Degrader-Folie nach dem ESA. Die Transmission vom Injektor-Cup (1) zm ESA2-Cup (8) ist 1,1%. Die totale Transmission vom Injektor-Cup (1) zum ToF-Cup (9) ist 0,34%.

Durchmesser von 25 mm direkt hinter dem 20°-Schaltmagneten ausgeschlossen. Mit einem Szintillator-Quarz vor dem Quellenkasten wurde bestimmt, dass der Ionenstrahl um 10 mm in x-Richtung und 5 mm in y-Richtung verschoben werden musste, um eine Transmission größer 10% zu erreichen. Vermutlich kompensiert die Verschiebung ein Steeren der Linse I. Die Transmission vom NE-Cup (3) zum HE-Cup (4) kann beim Moleküleinschuss nicht direkt bestimmt werden, da Molekülfragmente in einer Vielzahl von Ladungszuständen erzeugt werden. Der Test der Transmission erfolgte daher mit Protonen. Die Transmission ist 50%. Auch alle weiteren Messungen der Ladungszustandsverteilung von <sup>54</sup>Fe widerlegten diesen Wert nicht. Mit einem provisorischen Faraday-Cup (5) wurde der Ionenstrom vor den 90°-Analysiermagneten II fokussiert. Die Transmission ist 100%. Dieser Cup war auf einer Targetleiter mit einem Silizium-Detektor für die Messung des Beschleunigeruntergrunds montiert. Mit dem 0°-Faraday-Cup wurde die Ladungszustandsverteilung bestimmt. Der 10<sup>+</sup> Ladungszustand ist mit 23% gemessen worden. Die Transmission vom 0°-Faraday-Cup (6) zum ESA1-Cup (7) ist 100%. Der Durchmesser der Eintrittsblende des ESA1-Cup ist 8 mm. Der Strahldurchmesser ist kleiner 2 mm, was mit einem Lochquarz vor dem ESA1-Cup bestimmt wurde.

Die Transmission von ESA1-Cup (7) zum ESA2-Cup (8) ist ohne Degrader-Folie 100%. Die Transmission von ESA1-Cup (7) zum ESA2-Cup (8) ist mit 1,9  $\mu$ m SiN-Degrader-Folie 59%. Der Ladungszustand größter Intensität ist der 18<sup>+</sup> mit 28%. Die Transmission vom ESA2-Cup (8) zum ToF-Cup (9) ist ohne Degrader-Folie 60%. Die Transmission vom ESA2-Cup (8) zum ToF-Cup (9) ist mit 2,1  $\mu$ m SiN-Degrader-Folie 30%. Für diese Messungen wurde der Ionenstrom, der auf die Degrader-Folien trifft, auf 1 pnA reduziert, um sie nicht zu beschädigen.

Die Transmission von Injektor-Cup (1) zum ESA2-Cup (8) ist 1,1%. Die totale Transmission von Injektor-Cup (1) zum ToF-Cup (9) ist 0,34%. Auf Grund dieser Transmission wurde entschieden, die <sup>53</sup>Mn Messungen mit den Gasionisationsdetektoren direkt hinter dem ESA an Position (8) durchzuführen. Vergleichbare Transmissionen werden bei Dong et al. [61] vom Injektor zum Detektor von CIAE mit 0,6% angegeben.

Der Korrekturfaktor n ist ein Maß für die Transmission des Hochenergie-Massenspektrometers und ist der Kehrwert der Transmission zwischen der Messung des stabilen Isotops und den Detektorereignissen einer Standard-Probe.

$$n = \frac{1}{T}$$

Die Transmission wird hier durch die Verwendung eines passiven Absorbers in Kombination mit einem elektrostatischen Analysierer begrenzt. Die Transmission des Hochenergie-Massenspektrometers ist T=16,5%. Der resultierende Korrekturfaktor für die <sup>53</sup>Mn-Messung ist dabei n=6,1.

Vergleichswerte für die Transmission der Hochenergieseite und der entsprechende Korrekturfaktor von Messungen am MLL kann aus den Werten bei Knie [62] berechnet werden. Es folgt eine Transmission von T=2,4% und ein Korrekturfaktor von n=42. An der ANU werden Transmissionen von 41% bis 72% erreicht, was zu Korrekturfaktoren von 1,4 bis 2,4 führt [25]. Die hier Gemessenen Korrekturfaktoren werden den Literaturwerten in Tab. 2 gegenübergestellt.

# Kapitel 4.

# AMS-Messungen von mittelschweren Radionukliden

Für die ersten Messungen von Isotopenverhältnissen mit dem Beschleuniger-Massenspektrometer am FN-Tandembeschleuniger wurden die Isotope <sup>41</sup>Ca und <sup>53</sup>Mn gewählt. <sup>60</sup>Fe Standardmaterial war zu diesem Zeitpunkt in Köln nicht verfügbar. Ein kommerzieller <sup>32</sup>Si Standard ist momentan nicht erhältlich. Die (<sup>41</sup>Ca/<sup>40</sup>Ca)-Messungen waren für die ersten Tests besonders wichtig, da ohne die Verwendung von Degrader-Folien gearbeitet werden konnte. Es wurden (<sup>41</sup>Ca/<sup>40</sup>Ca)-Isotopenverhältnisse unter Verwendung des 6<sup>+</sup> und des 7<sup>+</sup> Ladungszustandes bei einer Terminalspannung von  $U_T$ =8,5 MV gemessen. Die Messungen des 6<sup>+</sup> Ladungszustandes sind in Anhang D dargestellt. Im Anschluss wurden die (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Isotopenverhältnissmessungen im 10<sup>+</sup> Ladungszustand mit einer 4 µm Degrader-Folie vor dem elektrostatischen Analysierer bei einer Terminalspannung von  $U_T$ = 9,28 MV durchgeführt.

# 4.1. <sup>41</sup>Ca-Messungen

Für die Messung der (<sup>41</sup>Ca/<sup>40</sup>Ca)-Isotopenverhältnisse standen zwei CaF<sub>2</sub> Standardmaterialien zur Verfügung, aus denen CaF<sub>3</sub><sup>-</sup> extrahiert wurde, C16 mit nominellem Isotopenverhältnis von  $C_s$ =1,155×10<sup>-10</sup> und C19 mit nominellem Isotopenverhältnis von  $C_s$ =1,095×10<sup>-12</sup> [162]. Gemessen wurde mit dem 2-Anoden-Gasionisationsdetektor hinter dem ESA, siehe Abb. 26. Für die Pilotstrahlen in dieser Massenregion stand K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> und TiH zur Verfügung, aus denen elementare negative Ionen in elektrisch messbarer Menge extrahiert werden konnten. Auf die Verwendung von KCl wurde verzichtet, da ein sehr hoher Cl Untergrund zu Interferenzen im Gasionisationsdetektor führen würde.

# 4.1.1. Ladungszustände

Der maximal erreichte  ${}^{40}\text{CaF}_3^-$  Ionenstrom lag bei 90 nA. Das Probenmaterial lag in einer Mischung mit Nb im Verhältnis 1:1 vor. Die gemessenen Ladungszustände

Feld [G]	Strom [nA]	q [e]	q [%]
7790	0,20	10	1
8232	0,95	9	6
8756	1,80	8	12
9392	2,40	7	19
10184	2,30	6	21
11245	1,80	5	19
12694	1,00	4	14

Tabelle 19.: <sup>40</sup>Ca-Ladungszustände bei  $U_T$ =8,5 MV mit I<sub>Inj</sub>=19,5 nA.

sind in Tab. 19 zusammengefasst. Im 6<sup>+</sup> Ladungszustand wurden 1,96% des Injektor-Stroms I<sub>Inj</sub>=19,5 nA gemessen, bei einer Terminalspannung von  $U_T$ =8,5 MV. Die Ladungszustände 3<sup>+</sup> und 11<sup>+</sup> konnten nicht identifiziert werden. Angegeben sind die relativen Anteile der Ladungszustandsverteilung.

Die Messung der ( ${}^{41}Ca/{}^{40}Ca$ )-Isotopenverhältnisse wurde im 6<sup>+</sup> Ladungszustand und im 7<sup>+</sup> Ladungszustand durchgeführt. Der 6<sup>+</sup> Ladungszustand zeichnet sich durch den höheren relativen Anteil der Ladungszustandsverteilung aus. Der 7<sup>+</sup> Ladungszustand zeichnet sich durch die höhere Energie und das daraus resultierende höhere Isobarentrennungsvermögen aus. Ein weiterer Vorteil ist der Unterschied des ionischen Untergrunds der Messung. Auftretende Komponenten konnten deutlich unterdrückt werden, siehe Kapitel 4.1.3. Im Folgenden wird die Optimierungsroutine (Tuning) für  ${}^{41}Ca^{7+}$  beschrieben. Das  ${}^{41}Ca^{6+}$  Tuning verläuft analog.

# 4.1.2. <sup>41</sup>Ca-Tuning

Das Tuning des AMS-Systems beginnt mit der Einstellung des Injektors, um einen hohen <sup>40</sup>CaF<sub>3</sub><sup>-</sup> Ionenstrom zu erreichen. Ionenströme größer 100 nA sind dabei angestrebt. Die Systemeinstellungen sind in Tab. 21 zusammengefasst. Es wurde eine geringe Extraktionsspannung von  $U_{Ex}$ =11 kV verwendet, um keinen zu hohen Niederenergie-Magnetstrom zu benötigen. Zu beachten ist, dass keine der beiden Bouncerspannungen nahe Null liegen sollte. Die Magneteinstellung kann über die Wahl der Bouncerspannung für <sup>40</sup>CaF<sub>3</sub><sup>-</sup> optimiert werden, die zweite Spannung kann berechnet werden. Diese Einstellung sollte zu keinem messbaren elektrischen Injektor-Cup-Strom führen. Die Optimierung auf den NE-Cup muss bei geöffneten NE-Schlitzen erfolgen. Bei Verwendung der 4 mm Blende kann dort momentan eine Transmission von *T*=75% erreicht werden. Die Entmagnetisierung des 20°-Magneten, der ohne Ablenkung passiert werden soll, kann mit einem Labornetzgerät erfolgen.

Die erste Einstellung der Terminalspannung erfolgt mit  ${}^{40}Ca^{7+}$ , um den Offset der Terminalspannungsanzeige zu bestimmen. Dazu wird der 90°-Analysiermagnet II auf den Soll-Wert des Magnetfeldes gestellt *B*=9389,1 G, unter Berücksichti-
$U_T$ [MV]	Messzeit [s]	N( <sup>41</sup> Ca) <sub>rROI</sub>	Rate [Hz]
8,430	300	0	0
8,440	300	70	0,23
8,450	300	64	0,21
8,460	300	21	0,07
8,470	300	0	0

Tabelle 20.: <sup>41</sup>Ca-Rate im Gasionisationsdetektor bezüglich Terminalspannung. C16 Standard gemessen im 6<sup>+</sup> Ladungszustand ohne Blende in Offset-Faraday-Cup-Kammer. Die Spektren der (<sup>41</sup>Ca/<sup>40</sup>Ca)–Isotopenverhältnismessung ist in Anhang D dargestellt.

gung der Injektionsenergie  $E_{\text{Inj}}$ =84 keV und der Soll Terminalspannung  $U_T$ =8,5 MV, zur Ionenenergie von 63,040 MeV. Bei der Optimierung des Ionenstrahls auf den 0°-Faraday-Cup, unter Variation der Terminalspannung, kann der Offset auf ±3 kV bestimmt werden.

Die zweite Einstellung der Terminalspannung erfolgt mit <sup>40</sup>Ca<sup>7+</sup>, um das Spektrum des Gasionisationsdetektors zu kalibrieren und den ESA zu optimieren. Dazu wird ein Ionenstrahl erzeugt, der das gleiche (E/q) besitzt, wie später die <sup>41</sup>Ca<sup>7+</sup> Ionen haben werden. Ohne Energieverlust in der Eintrittsfolie des Gasionisationsdetektors ist die Energie 63,091 MeV. Um diesen Ionenstrahl in den Detektor zu transportieren, wird die Terminalspannung auf  $U_T$ =8,507 MV gestellt, wobei der Offset berücksichtigt werden muss. Der 90°-Analysiermagnet II wird auf B=9392,7 G gestellt. Die Terminalspannung kann über den Ionenstrom auf den 0°-Faraday-Cup optimiert werden. Die Einstellungen des Quadrupol-Tripletts werden auf den Cup vor dem ESA optimiert. Der ESA wird auf 5,15 MV/m gestellt. Die Linsenströme der ESA-Quadrupole I<sub>Q1-4</sub> können in erster Näherung entsprechend den Linsenparametrisierungen gefahren werden, siehe Kapitel 3.5. Der Ionenstrom muss nun auf den Cup vor dem Gasionisationsdetektor optimiert werden. Der elektrisch messbare Ionenstrom kann über die NE-Schlitze reduziert werden, bis eine Zählrate erreicht wird, die über die Elektronik des Gasionisationsdetektors verarbeitet werden kann. Im zweidimensionalen Spektrum wird nun die rROI gesetzt, an der später das <sup>41</sup>Ca gemessen wird, da es den gleichen Energieverlust im Eintrittsfenster hat wie der <sup>40</sup>Ca-Pilotstrahl.

Die dritte Einstellung der Terminalspannung erfolgt mit <sup>40</sup>Ca<sup>7+</sup>, um die magnetischen Komponenten zu optimieren, indem das gleiche (p/q) zu erzeugt wird, wie später die <sup>41</sup>Ca<sup>7+</sup> Ionen bei der Messung des Isotopenverhältnisses haben werden. Um die <sup>40</sup>Ca Ionen auf den 0°-Faraday-Cup zu fokussieren, muss die Energie 64,669 MeV betragen, und der 90°-Analysiermagnet II auf ein Magnetfeld von *B*=9509,1 G gestellt werden. Dazu wird die Terminalspannung auf *U*<sub>T</sub>=8,720 MV gestellt, wobei der Offset berücksichtigt werden muss. Der Ionenstrom wird danach auf den Cup vor dem ESA optimiert.

Die letzte Einstellung der Terminalspannung erfolgt, um <sup>41</sup>Ca<sup>7+</sup> im Detektor zu

messen. Dazu wird die Terminalspannung auf den Wert der ersten Einstellung gestellt,  $U_T$ =8,500 MV, und <sup>40</sup>Ca<sup>7+</sup> im Offset-Cup gemessen. Da der Offset-Cup einen Öffnungsdurchmesser von 1 cm besitzt, ist der Offset der Terminalspannung hier von besonderer Bedeutung. Variationen von ±10 kV führen zu hohen Transmissionsverlusten, wie die <sup>41</sup>Ca Messungen unter Verwendung des 6<sup>+</sup> Ladungszustandes gezeigt haben, siehe Tab. 20. Durch Umschalten des Bouncers auf die <sup>41</sup>CaF<sub>3</sub><sup>-</sup> Komponente mit der Masse 98 u kann das Isotopenverhältnis gemessen werden.

#### 4.1.3. (<sup>41</sup>Ca/<sup>40</sup>Ca)-Messung im 7<sup>+</sup> Ladungszustand bei $U_T$ =8,500 MV

Die (<sup>41</sup>Ca/<sup>40</sup>Ca)-Messungen wurden bei 63,09 MeV im 7<sup>+</sup> Ladungszustand mit einer Terminalspannung von  $U_T$ =8,5 MV durchgeführt. Die Messungen der zwei verschiedenen Standards und des Blanks wurden bei einem Detektordruck von 144 mbar durchgeführt. Zuerst wurde das Detektorspektrum, analog zur <sup>40</sup>Ca Kalibration, mit <sup>39</sup>K mit passender Energie kalibriert. In Abb. 47a ist außerdem die Kalibration mit <sup>39</sup>K, <sup>40</sup>Ca und <sup>48</sup>Ti im 6<sup>+</sup> Ladungszustand bei einem Detektordruck von 134 mbar gezeigt, deren Energien nahe an der Summengerade der Anoden liegen.

Die Messung des C16 Standards [162] mit einem nominellen Isotopenverhältnis von  $C_s$ =1,155×10<sup>-10</sup> lieferte mit N(<sup>41</sup>Ca)<sub>rROI</sub>=85 Detektorereignissen in 3600 s und einem mittleren <sup>40</sup>Ca Ionenstrom von 1,35 nA im 7<sup>+</sup> Ladungszustand ein Isotopenverhältnis von C=1,96×10<sup>-11</sup> mit einen Korrekturfaktor von  $n_1$ =5,89, Abb. 47b.

Die Messung des C19 Standards [162] mit einem nominellen Isotopenverhältnis von  $C_s$ =1,095×10<sup>-12</sup> lieferte mit N(<sup>41</sup>Ca)<sub>rROI</sub>=5 Detektorereignissen in 3600 s und einem mittleren <sup>40</sup>Ca Ionenstrom von 8,5 nA im 7<sup>+</sup> Ladungszustand ein Isotopenverhältnis von C=1,83×10<sup>-13</sup> und einen Korrekturfaktor von  $n_2$ =5,98, Abb. 47c.

Die Messung eines Blanks bei einem mittleren <sup>40</sup>Ca Ionenstrom von 3,5 nA im 7<sup>+</sup> Ladungszustand lieferte in 3600 s kein Ereignis in der rROI. Das resultierende unkorrigierte Isotopenverhältnis ist  $C_B < 8,90 \times 10^{-14}$  unter der Annahme eines Counts. Das mit dem Korrekturfaktor  $n_2$  korrigierte Isotopenverhältnis ist damit  $C_{n_2} < 5,32 \times 10^{-13}$ , Abb. 47d.

Der <sup>41</sup>K Untergrund ist durch den hier erreichten Ionenstrom der Ionenquelle gering, wodurch keine Untergrundkorrektur nötig wurde. Für das Detektionslimit folgt:

$$C_L < 5,32 \times 10^{-13}.$$

In den Spektren sind zwei benachbarte (M/q)-Interferenzen zu erkennen, die als  ${}^{35}\text{Cl}^{6+}$  und  ${}^{47}\text{Ti}^{8+}$  identifiziert werden konnten. Vergleichbare ( ${}^{41}\text{Ca}/{}^{40}\text{Ca}$ )-Messungen sind bei Shen et al. [163] und Hosoya et al. [159] zu finden.

Durch die Verwendung einer 8 mm Blende nach dem 90°-Analysiermagneten II konnte eine Komponente über und eine Komponente unter dem <sup>41</sup>Ca Peak unterdrückt werden, wodurch gleichzeitig ein höherer Korrekturfaktor entstand. Ohne



Abbildung 47.: (<sup>41</sup>Ca/<sup>40</sup>Ca)-Isotopenverhältnissmessung bei 63,09 MeV im 7<sup>+</sup> Ladungszustand mit  $U_T$ =8,5 MV. Die Spektren wurden bei einem Detektordruck von 144 mbar gemessen. (a) Detektorkalibration mit <sup>39</sup>K im 7<sup>+</sup> Ladungszustand mit 63,09 MeV. Gezeigt ist außerdem die Kalibration mit <sup>39</sup>K, <sup>40</sup>Ca und <sup>48</sup>Ti im 6<sup>+</sup> Ladungszustand bei einem Detektordruck von 134 mbar. (b) Messung des C16 Standards [162] mit nominellen Isotopenverhältnis von  $C_s$ =1,155×10<sup>-10</sup>, Korrekturfaktor  $n_1$ =5,89. (c) Messung des C19 Standards [162] mit nominellen Isotopenverhältnis von  $C_s$ =1,095×10<sup>-12</sup>, Korrekturfaktor  $n_2$ =5,98. (d) Messung eines Ca-Blanks, unkorrigiertes Isotopenverhältnis  $C_B$ <8,90×10<sup>-14</sup>, korrigiertes Isotopenverhältnis  $C_{n_2}$ = $C_L$ <5,32×10<sup>-13</sup>, unter der Annahme eines Counts.

die Blende wurde ein Wert von n=2,5 erreicht. Die Ursache dieses Transmissionsverlustes wird der Coulombexplosion und der damit erhöhten Emittanz zugeordnet. Eine Vergleichsmessung mit elementar eingeschossenem <sup>41</sup>K zeigte deutlich höhere Transmissionen durch das gesamte AMS-System.

Sektion	Komponente Wert Sektior		Sektion	Komponente	Wert
	Sputterspannung	5,097 kV	ACC	Terminal	8,500 MV
	Sputterstrom	0,36 mA	ACC	Terminalsteerer	-11 skt
	Cs-Fokus	4,174 kV		Steerer x1	0 kV
MC-SNICS	Extraktion	11,480 kV		Steerer x2	-2,03 kV
	Einzellinse	0,110 kV	UГ	Steerer y1	0,7 kV
	Ionisierer	23,6 A	TIL	Steerer y2	0 kV
	Ofenheizung	0,80 A		Quadrupol 1	0,438 A
	Steerer y	139 V	-	Quadrupol 2	0,451 A
	ESA-Spannung	1,653 kV		Magnet	9509 G
	Magnet	69,75 A		Magnetstrom	182 A
Injektor	Bouncer HV1	413 V	HEM	Steerer y1	0,78 A
	Bouncer HV2	246 V	1 112111	Offset-Cup 1	n/a
	Bouncer HV3	n/a		Offset-Cup 2	-55,7 mm
	Steerer x1	261 V		Blende	8 mm
	Steerer y1	68 V	HEO	Triplett 1	35,1 A
	Steerer x2	75 V	TILQ	Triplett 2	29,4 A
	Steerer y2	89 V		Degrader-Folie	n/a
	Vorbeschleunigung	67,4 kV		Schlitze	10,16 mm
	Quadrupol 1&3	1,261 kV		Quadrupol 1	16,0 A
	Quadrupol pos2	1,331 kV		Quadrupol 2	21,8 A
	Quadrupol neg2	1,275 kV	HEE	ESA	75,65 kV
	Linse I	8 kV		Quadrupol 3	21,8 A
NE	Steerer x1	0,30 kV		Quadrupol 4	16,0 A
	Steerer x2	-0,20 kV		Schlitze	20 mm
	Steerer y1	-1,61 kV		Degrader-Folie	n/a
	Steerer y2	1,19 kV		Fenster (SiN)	0,5 μm
	Linse II	51 kV	Detektor	Druck	144 mbar
	Linse III	0 kV		Spannung	430 V

Tabelle 21.: Einstellungen der ( ${}^{41}Ca/{}^{40}Ca$ )-Isotopenverhältnismessungen mit 63,09 MeV im 7<sup>+</sup> Ladungszustand bei Injektion des Moleküls CaF<sub>3</sub><sup>-</sup>.

#### 4.2. <sup>53</sup>Mn-Messungen

Für die Messung der (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Isotopenverhältnisse standen zwei MnO<sub>2</sub> Standardmaterialien zur Verfügung, aus denen MnO<sup>-</sup> extrahiert wurde, D9 mit nominellem Isotopenverhältnis von  $C_s$ =1,047×10<sup>-9</sup> und D10 mit nominellem Isotopenverhältnis von  $C_s$ =1,043×10<sup>-10</sup> [164]. Gemessen wurde, unter Verwendung einer 4 µm Degrader-Folie vor dem ESA, mit dem 2-Anoden-Gasionisationsdetektor hinter dem ESA, siehe Abb. 26. Für die Pilotstrahlen in dieser Massenregion stand MnO zur Verfügung. Auf die Verwendung von <sup>53</sup>Cr in elektrisch messbarer Menge wurde vor den Messungen der (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Isotopenverhältnisse verzichtet, da ein Memory-Effekt zu einem hohen <sup>53</sup>Cr Untergrund führen würde.

#### 4.2.1. Ladungszustände

Der maximal erreichte <sup>55</sup>MnO<sup>-</sup> Ionenstrom lag bei über 500 nA. Das Probenmaterial lag in einer Mischung mit Ag im Verhältnis 1:1 vor. Die gemessenen Ladungszustände sind in Tab. 22 zusammengefasst. Im 10<sup>+</sup> Ladungszustand wurden 6,5% des Injektor-Stroms I<sub>Inj</sub>=24,6 nA gemessen, bei einer Terminalspannung von  $U_T$ =9,28 MV.

Feld [G]	Strom[nA]	q [e]	q [%]
9231	7,0	11	9
9716	16,0	10	23
10279	24,0	9	38
10963	14,0	8	25
11795	3,2	7	6

Tabelle 22.: <sup>55</sup>Mn-Ladungszustände bei  $U_T$ =9,28 MV mit I<sub>Ini</sub>=24,6 nA.

Die Messung der (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Isotopenverhältnisse wurde im 10<sup>+</sup> Ladungszustand durchgeführt. Dieser Ladungszustand zeichnet sich durch die hohe Energie und das daraus resultierende hohe Isobarentrennungsvermögen aus. Im Folgenden wird die Isobarentrennung mit Degrader-Folie und ESA und die Optimierungsroutine (Tuning) für <sup>53</sup>Mn<sup>10+</sup> beschrieben.

#### 4.2.2. Isobarentrennung mit Degrader-Folie und ESA

Der Isobarentrennungsfaktor bei der Verwendung eines mit Gas gefüllten Magneten oder der Degrader-Folie mit ESA ist mit den verwendeten Detektoren nicht direkt messbar [23]. Die <sup>53</sup>Cr Zählrate liegt bei Ionenströmen des stabilen Isotops <sup>55</sup>Mn von 0,25 pnA in der Größenordnung von 100 kHz, die zu Detektortotzeiten von  $\tau$ >30% führt sowie zu starkem pile-up.

Zur indirekten Bestimmung der <sup>53</sup>Cr Unterdrückung wurde zuerst mit zwei verschieden Degrader-Foliendicken, 2 µm und 4 µm, gemessen, siehe Abb. 48. Durch den Umbau der Degrader-Folien wurden die Messungen an aufeinanderfolgenden Tagen durchgeführt und der Ionenstrom aus der Ionenquelle war nicht gleich. Berücksichtigt man diesen unterschiedlichen Ionenstrom und die Messdauer, folgt ein normalisierter <sup>53</sup>Cr Isobarentrennungsfaktor von  $U_n$ >122(8). Da die Messung mit der 2 µm Degrader-Folie ebenfalls eine <sup>53</sup>Cr Unterdrückung beinhaltet, ist die tatsächliche Unterdrückung höher.

Die zweite Abschätzung erfolgt über die gemessene Zählrate aller Detektorereignisse auf Anode 1 bei der Messung des Isotopenverhältnisses und der gesamt <sup>53</sup>Cr Zählrate ohne Degrader-Folie, die über ein Ratemeter gemessen wurde. Dazu wurde der <sup>53</sup>Cr Strahl aus einem D9 Standard ohne Degrader-Folie in den Detektor fokussiert. Trotz der großen Totzeit ist eine Rate >100 kHz messbar. Mit 4 µm Degrader-Folie kann auf die <sup>53</sup>Cr Rate der Ladungszustände nach dem Durchgang







 $10^{3}$ 

 $10^{2}$ 

10

<sup>53</sup>Mn

 $170\ 175\ 180$ 

Abbildung 48.: Vergleich der Isobarentrennung mit verschiedenen Degrader-Foliendicken. (a) 2 µm Degrader-Folie vor ESA mit 2,440 MV/m. (b) 4 µm Degrader-Folie vor ESA mit 2,147 MV/m. Der normalisierte <sup>53</sup>Cr Isobarentrennungsfaktor ist  $U_n$ >122(8).

180

160

140

120

100

80

60

40

140 145 150 155 160 165

Tabelle 23.: <sup>53</sup>Cr-Ladungszustände mit 2 μm Degrader-Folie ausgehend von 2,5 nA <sup>53</sup>Cr im 10<sup>+</sup> Ladungszustand. Es folgt eine Transmission von 53,6% für die Summe aus Beschleunigertransmission und Populierung des Ladungszustandes.

ESA [MV/m]	Strom [pA]	q [e]	q [%]
2,29	69	20	2,7
2,47	360	19	14,7
2,59	440	18	18,9
2,75	590	17	26,9
2,93	510	16	24,7
3,11	235	15	12,1
3,31	63	14	3,5
3,61	6	13	0,4

durch die Degrader-Folie fokussiert werden. Durch die Populierung verschiedener Ladungszustände und Transmissionsverluste betrug die Rate des 16<sup>+</sup> Ladungszustandes 2 kHz, vgl. Ladungszustandsverteilung Tab. 24. Bei der zugehörigen Messung des ( $^{53}$ Mn/ $^{55}$ Mn)-Isotopenverhältnisses des D10 Standards betrug die mittlere  $^{53}$ Cr-Rate 1,53 Hz, N( $^{53}$ Cr)<sub>iROI</sub>=918, t=600 s (D10 Nr. 9, Tab. 25). Es folgt ein normalisierter Isobarentrennungsfaktor von  $U_n$ >1307(78).

#### 4.2.3. <sup>53</sup>Mn-Tuning

Das Tuning des AMS-Systems beginnt mit der Einstellung des Injektors. Dabei sind mittlere <sup>55</sup>MnO<sup>-</sup> Ionenströme von ca. 100 nA angestrebt. Höhere Ionenströme können bei geringem <sup>53</sup>Cr Untergrund angestrebt werden. Die Systemeinstellungen sind in Tab. 26 zusammengefasst. Zu beachten ist, dass keine der beiden Bouncerspannungen nahe Null liegen sollte. Die Magneteinstellung kann über die Wahl

ESA [MV/m]	Strom [pA]	q [e]	q [%]
2,11	20	18	7,5
2,23	60	17	23,7
2,35	80	16	33,6
2,52	55	15	24,6
2,71	20	14	9,6
2,91	2	13	1,0

Tabelle 24.: <sup>53</sup>Cr-Ladungszustände mit 4 μm Degrader-Folie ausgehend von 0,5 nA <sup>53</sup>Cr im 10<sup>+</sup> Ladungszustand. Es folgt eine Transmission von 29,8% für die Summe aus Beschleunigertransmission und Populierung des Ladungszustandes.

der Bouncerspannung für <sup>55</sup>MnO<sup>-</sup> optimiert werden, die zweite Spannung kann berechnet werden. Diese Einstellung sollte zu keinem messbaren elektrischen Injektor-Cup-Strom führen. Die Optimierung auf den NE-Cup muss bei geöffneten NE-Schlitzen erfolgen. Die Entmagnetisierung des 20°-Magneten, der ohne Ablenkung passiert werden soll, kann mit einem Labornetzgerät erfolgen.

Die erste Einstellung der Terminalspannung erfolgt mit <sup>55</sup>Mn<sup>10+</sup>, um den Offset der Terminalspannungsanzeige zu bestimmen. Dazu wird der 90°-Analysiermagnet II auf den Soll-Wert des Magnetfeldes gestellt *B*=9709,1 G, unter Berücksichtigung der Injektionsenergie  $E_{\text{Inj}}$ =89,4 keV und der Soll Terminalspannung  $U_T$ = 9,280 MV, zur Ionenenergie von 100,06 MeV. Bei der Optimierung des Ionenstrahls auf den 0°-Faraday-Cup, unter Variation der Terminalspannung, kann der Offset auf ±3 kV bestimmt werden.

Die zweite Einstellung der Terminalspannung erfolgt mit <sup>55</sup>Mn<sup>10+</sup>, um das Spektrum des Gasionisationsdetektors zu kalibrieren und den ESA zu optimieren. Dazu wird ein Ionenstrahl erzeugt, der das gleiche (E/q) besitzt wie später die <sup>53</sup>Mn<sup>10+</sup> Ionen haben werden. Ohne Energieverlust in der Degrader-Folie vor dem ESA und in der Eintrittsfolie des Gasionisationsdetektors ist die Energie 100 MeV. Um diesen Ionenstrahl in den Detektor zu transportieren, wird die Terminalspannung auf  $U_T$ =9,275 MV gestellt, wobei der Offset berücksichtigt werden muss. Der 90°-Analysiermagnet II wird auf B=9706,4 G gestellt. Die Terminalspannung kann über den Ionenstrom auf den 0°-Faraday-Cup optimiert werden. Die Einstellungen des Quadrupol-Tripletts werden auf den Cup vor dem ESA optimiert. Der ESA wird auf 2,287 MV/m gestellt. Die Linsenströme der ESA Quadrupole I<sub>O1-4</sub> können in erster Näherung entsprechend den Linsenparametrisierungen gefahren werden, siehe Kapitel 3.5. Der Ionenstrom muss nun auf 1 pnA reduziert werden, um Beschädigungen an der Degrader-Folie zu vermeiden. Danach kann der Ionenstrom auf den Cup vor dem Gasionisationsdetektor optimiert werden. Bei üblichen Einstellungen der NE-Seite ist es mit den NE-Schlitzen möglich, den Ionenstrahl so stark zu reduzieren, um Zählraten unter 1 kHz im Gasionisationsdetektor zu bekommen. Im zweidimensionalen Spektrum wird nun die rROI gesetzt, an der später das <sup>53</sup>Mn gemessen wird, da es den gleichen Energieverlust in der Degrader-Folie vor dem

ESA und im Eintrittsfenster hat wie der <sup>55</sup>Mn-Pilotstrahl.

Die dritte Einstellung der Terminalspannung erfolgt mit <sup>55</sup>Mn<sup>10+</sup>, um die magnetischen Komponenten zu optimieren, indem das gleiche (p/q) zu erzeugt wird, wie später die <sup>53</sup>Mn<sup>10+</sup> Ionen bei der Messung des Isotopenverhältnisses haben werden. Um die <sup>55</sup>Mn Ionen auf den 0°-Faraday-Cup zu fokussieren, muss die Energie 96,364 MeV betragen, und der 90°-Analysiermagnet II auf ein Magnetfeld von *B*=9528,2 G gestellt werden. Dazu wird die Terminalspannung auf *U*<sub>T</sub>=8,937 MV gestellt, wobei der Offset berücksichtigt werden muss. Der Ionenstrom wird danach auf den Cup vor dem ESA optimiert.

Die letzte Einstellung der Terminalspannung erfolgt, um <sup>53</sup>Mn<sup>10+</sup> im Detektor zu messen. Dazu wird die Terminalspannung auf den Wert der ersten Einstellung gestellt  $U_T$ =9,280 MV und <sup>55</sup>Mn<sup>10+</sup> im Offset-Cup gemessen. Da der Offset-Cup einen Öffnungsdurchmesser von 1 cm besitzt, ist der Offset der Terminalspannung hier von besonderer Bedeutung. Variationen von ±10 kV führen zu hohen Transmissionsverlusten. Durch Umschalten des Bouncers auf die <sup>53</sup>MnO<sup>-</sup> Komponente mit der Masse 69 u kann im Idealfall direkt <sup>53</sup>Mn im Gasionisationsdetektor gemessen werden. Über die Zählrate der Anode 1 kann auf die <sup>53</sup>Cr Komponente optimiert werden. Dazu muss der ESA verstellt werden, da der <sup>53</sup>Cr Ionenstrahl auf einer anderen Sollbahn liegt. Bei der Fokussierung auf diese Rate können die verschiedenen Ladungszustände identifiziert werden, siehe Tab. 24. Nach der Optimierung wird der ESA auf den in der zweiten Einstellung bestimmten Wert gestellt. Dieser sollte mittig zwischen zwei<sup>53</sup>Cr Nachbarladungszuständen liegen.

# 4.2.4. ( ${}^{53}$ Mn/ ${}^{55}$ Mn)-Messung im 10<sup>+</sup> Ladungszustand bei $U_T$ =9,280 MV

Die (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Messungen wurden bei 100 MeV im 10<sup>+</sup> Ladungszustand mit  $U_T$ =9,280 MV durchgeführt. Die Messungen der zwei verschiedenen Standards und des Blanks wurden bei einem Detektordruck von 100 mbar durchgeführt. Zuerst wurde das Detektorspektrum mit <sup>55</sup>Mn mit passender Energie kalibriert, siehe Abb. 49a. Durch den nahezu massenunabhängigen Energieverlust in der Degrader-Folie und im Detektorfenster erfahren die <sup>55</sup>Mn Ionen den gleichen Energieverlust wie die <sup>53</sup>Mn Ionen.

Die Messung des D9 Standards [164] mit einem nominellen Isotopenverhältnis von  $C_s$ =1,047×10<sup>-9</sup> lieferte mit N(<sup>53</sup>Mn)<sub>rROI</sub>=233 Detektorereignissen in 608 s und einem mittleren <sup>55</sup>Mn Ionenstrom von 28,3 nA im 10<sup>+</sup> Ladungszustand ein Isotopenverhältnis von C=2,17×10<sup>-11</sup> und einen Korrekturfaktor von  $n_1$ =48, Abb. 49b.



Abbildung 49.: (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Isotopenverhältnissmessung bei 100 MeV im 10<sup>+</sup> Ladungszustand,  $U_T$ =9,28 MV. Verwendet wurde eine 4 µm Degrader-Folie vor dem ESA. Ausgewählt wurde nach dem ESA der 16<sup>+</sup> Ladungszustand bei 2,287 MV/m. Die Spektren wurden bei einem Detektordruck von 100 mbar gemessen. (a) Detektorkalibration mit <sup>55</sup>Mn mit 100 MeV vor Degrader-Folie. (b) Messung des D9 Standards[164] mit nominellem Isotopenverhältnis von  $C_s$ =1,047×10<sup>-9</sup>, Korrekturfaktor  $n_1$ =48. (c) Messung des D10 Standards [164] mit nominellem Isotopenverhältnis von  $C_s$ =1,043×10<sup>-10</sup>,  $C_b$ =8,17×10<sup>-12</sup>, Korrekturfaktor  $n_2$ =13. (d) Messung eines Mn-Blanks, unkorrigiertes Isotopenverhältnis  $C_B$ =7,57×10<sup>-13</sup>, korrigiertes Isotopenverhältnis  $C_{bn}$ =6,70×10<sup>-13</sup>.

Die Messung des D10 Standards [164] mit einem nominellen Isotopenverhältnis von  $C_s$ =1,043×10<sup>-10</sup> lieferte mit N(<sup>53</sup>Mn)<sub>rROI</sub>=53 Detektorereignisse in 1207 s und einem mittleren <sup>55</sup>Mn Ionenstrom von 6 nA im 10<sup>+</sup> Ladungszustand ein Isotopenverhältnis von C=1,17×10<sup>-11</sup> und einen Korrekturfaktor von  $n_2$ =13 nach der Untergrundkorrektur, Abb. 49c.

Die Messung eines Blanks bei einem mittleren <sup>55</sup>Mn Ionenstrom von 14,5 nA im 10<sup>+</sup> Ladungszustand lieferte N(<sup>53</sup>Cr)<sub>rROI</sub>=6 in 876 s. Das resultierende unkorrigierte Isotopenverhältnis ist  $C_B$ =7,57×10<sup>-13</sup>. Das über den Untergrund und mit dem Korrekturfaktor  $n_2$  korrigierte Isotopenverhältnis ist  $C_{bn_2}$ =6,70×10<sup>-13</sup>, Abb. 49d.

Der <sup>53</sup>Cr Untergrund wurde durch Messungen eines Blanks mit einem hohen <sup>53</sup>Cr Anteil bestimmt (Blank Nr. 14, Tab. 25),

$$b = \frac{N({}^{53}\text{Cr})_{\text{rROI}}}{N({}^{53}\text{Cr})_{\text{iROI}}} = \frac{99}{107716} = \frac{1}{1088}$$

wodurch eine Untergrundkorrektur der D10 Standards ermöglicht wurde.

$$N_b ({}^{53}\text{Mn})_{\text{rROI}} = N ({}^{53}\text{Mn})_{\text{rROI}} - b \times N ({}^{53}\text{Cr})_{\text{iROI}}$$

Das Detektionslimit der (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Messung folgt aus der Blank Messung mit N(I)<sub>rROI</sub>=6 und  $C_B$ =7,57×10<sup>-13</sup>:

$$C_L = 7,20 \times 10^{-13}$$

Aus der Blank Messung folgt zusätzlich der Isobarentrennungsfaktor des Gasionisationsdetektors  $U_f=10^3$ .

In allen Spektren der (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Messungen ist eine benachbarte (M/q)-Interferenz zu erkennen, die als <sup>55</sup>Mn identifiziert wurde, vgl. Dong et al. [61]. Die Doppelstruktur der <sup>53</sup>Cr Komponente ist ein ungeklärter Detektoreffekt. Durch Erhöhung des Gasdrucks konnte er reduziert werden. Möglich ist eine teilweise Zerstörung von Isobutanmolekülen durch das Tuning mit hohen <sup>53</sup>Cr-Zählraten. Interferenzen aus Ladungszustandsänderungen sind abhängig von den Systemeinstellungen. Sie tragen nicht zu einem Untergrund in der rROI bei.

Für die (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Messungen folgt mit der mittleren fehlernormalisierten Sensitivität nach Normalisierung auf eine Messzeit von 600 s der Variationskoeffizient:

$$v = \frac{\sigma_{600s,10\%}}{\langle S_{600s,10\%} \rangle} = \frac{0,99 \times 10^{-10}}{3,35 \times 10^{-10}} = 29,6\%$$

Die Messungen zu Tab. 25 sind in der Darstellung der fehlernormalisierten Sensitivität Abb. 6 dargestellt. Messung Nr. 2 wurde nach der Übernachtabschaltung des Beschleunigers aufgenommen ohne das System neu zu optimieren. Der Wert wurde nicht in der Berechnung des Variationskoeffizienten berücksichtigt. Die Proben der Messungen Nr. 2, 12 und 14 weisen einen deutlich erhöhten <sup>53</sup>Cr Untergrund auf, der auf das verwendete Silberpulver zurückgeführt werden konnte. Messung Nr. 14 wurde für die Untergrundkorrektur verwendet.

Die Streuung der Korrekturfaktoren kann durch verschiedene Effekte verursacht werden, die einzeln überprüft werden müssen [8]:

- Zeitabhängige Spannungs- und Stromvariationen
- Phasenraum und Ionenoptik
- Stripper- und Degrader-Folien-Inhomogenitäten
- Abhängigkeiten der Probenbeschaffenheit (Mischung, Kraterbildung, etc.)
- Crosskontaminationen
- Unzureichende Maschineneinstellungen

$ m 25.:$ Ubersicht der ( $^{53} m Mn/^{55} m Mn)$ -Isotopenverhältnismessungen mit 100 MeV im $10^+$ Ladungszustand. In Abb. 49 sind die Messungen Nr. 13, 6
4 dargestellt. Die Proben der Messungen Nr. 2, 12 und 14 weisen einen deutlich erhöhten 33 Cr Untergrund auf, der auf das verwendete Silberpu
zurückgeführt werden konnte. Messung Nr. 14 wurde für die Untergrundkorrektur verwendet.

Vr. 13, 6 und öilberpulver	$\Delta C_b$ [%]	6,0	4,0	6,6	6,6	16,5	13,7	20,3	13,9	ı	ı	ı
ssungen N vendete S	$u_b$	108,22	29,87	50,91	48,98	12,77	9,24	11,97	14,48	ı	ı	ı
49 sind die Mee ler auf das verv	$C_b$	$9,68\! imes\!10^{-12}$	$3,50\!\times\!10^{-11}$	$2,06\! imes\!10^{-11}$	$2,14\! imes\!10^{-11}$	$8,17 \times 10^{-12}$	$1,13\!\times\!10^{-11}$	$8,72 \times 10^{-12}$	$7,20\!\times\!10^{-12}$	I	I	ı
. In Abb. nd auf, d	и	77,82	29,64	42,06	48,17	8,90	8,62	11,56	14,34	ı	ı	ı
dungszustand <sup>53</sup> Cr Untergru ndet.	JI C	$1,35 \times 10^{-11}$	$3,53 \times 10^{-11}$	$2,49 \times 10^{-11}$	$2,17 \times 10^{-11}$	$1,17 \times 10^{-11}$	$1,21 \times 10^{-11}$	$9,02 \times 10^{-12}$	$7,27 \times 10^{-12}$	$7,57 \times 10^{-13}$	$1,53 \times 10^{-13}$	$3,55 \times 10^{-12}$
1eV im 10 <sup>+</sup> La lich erhöhten rrektur verwe	$N_b (^{53}Mn)_{rRC}$	273,3	620,1	227,2	229,1	36,9	53,1	24,2	51,5	6'0	1,9	0'0
ngen mit 100 N sen einen deut Untergrundko	N( <sup>53</sup> Cr) <sub>iROI</sub>	116140	5282	52000	4200	17500	4200	918	550	5600	1200	107716
nismessu d 14 wei: e für die	t [s]	2446	1800	600	608	1207	1006	600	664	876	1189	600
Isotopenverhältı gen Nr. 2, 12 un ıng Nr. 14 wurdı	$N(^{53}Mn)_{rROI}$	380	625	275	233	53	57	25	52	9	С	66
n/ <sup>55</sup> Mn)-] : Messun te. Messu	Ī	18,5	15,75	29,5	28,25	6	7,5	7,4	17,25	14,5	26,5	74,5
er ( <sup>53</sup> Mr oben dei en konn	Istop	18,5	17	32	31,5	9	9	8,8	18	17	29	82,5
ersicht d t. Die Pr nrt werd	I <sub>Start</sub>	18,5	14,5	27	25	9	6	9	16,5	12	24	66,5
25.: Üb şestellt kgefüł	Nr.	7	8	12	13	9	$\sim$	6	10	4	11	14
Tabelle 2 4 darg zurüc	Typ	D9				D10				Blank		

Sektion	Komponente	Wert	Sektion	Komponente	Wert
	Sputterspannung	4,167 kV	ACC	Terminal	9,281 MV
	Sputterstrom	0,11 mA	ACC	Terminalsteerer	-5 skt
	Cs-Fokus	4,137 kV		Steerer x1	0,01 kV
MC-SNICS	Extraktion	17,399 kV		Steerer x2	0,01 kV
	Einzellinse	2,242 kV	HE	Steerer y1	1,02 kV
	Ionisierer	24,1 A	TIL	Steerer y2	-0,01 kV
	Ofenheizung	0,75 A	_	Quadrupol 1	0,435 A
	Steerer y	264 V		Quadrupol 2	0,451 A
	ESA-Spannung	2,150 kV		Magnet	9528 G
	Magnet	67,55 A		Magnetstrom	182 A
Injektor	Bouncer HV1	200 V	HEM	Steerer y1	1,05 A
	Bouncer HV2	842 V	I ILIVI	Offset-Cup 1	83,6 mm
	Bouncer HV3	n/a		Offset-Cup 2	n/a
	Steerer x1	213 V		Blende	8 mm
	Steerer y1	159 V	HEO	Triplett 1	33,3 A
	Steerer x2	14 V		Triplett 2	29 A
	Steerer y2	3 V		Degrader-Folie	4 µm
	Vorbeschleunigung	67,8 kV		Schlitze	5,08 mm
	Quadrupol 1&3	1,281 kV		Quadrupol 1	6,2 A
	Quadrupol pos2	1,202 kV		Quadrupol 2	7,4 A
	Quadrupol neg2	1,353 kV	HEE	ESA	34,3 kV
	Linse I	9 kV		Quadrupol 3	7,4 A
NE	Steerer x1	-0,01 kV		Quadrupol 4	6,2 A
	Steerer x2	0,00 kV		Schlitze	20 mm
	Steerer y1	-1,16 kV		Degrader-Folie	n/a
	Steerer y2	0,42 kV		Fenster (SiN)	0,5 μm
	Linse II	57 kV	Detektor	Druck	100 mbar
	Linse III	0 kV		Spannung	430 V

Tabelle 26.: Einstellungen der (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Isotopenverhältnismessungen mit 100 MeV im 10<sup>+</sup> Ladungszustand bei Injektion des Moleküls MnO<sup>-</sup>.

Zeitabhängigkeiten von Spannungs- und Stromvariationen führen zu einer Zeitabhängigkeit der <sup>53</sup>Mn Counts, die über die Poisson-Verteilung der Zeitsignaturen der List-Mode-Daten überprüft werden können. Unterschiede des Phasenraums können zu Isotopenfraktionierung führen. Eine "flat-top" Maschineneinstellung reduziert Verluste bei kleinen Variationen der Betriebsparameter. Kleinste ionenoptische Änderungen in der Ionenquelle können zu Positionsänderungen des Ionenstrahls auf Stripper- und Degrader-Folien führen, deren Inhomogenitäten zu großen Änderungen der Stripperwahrscheinlichkeit und des Energieverlustes führen können, wodurch probenabhängige Isotopenfraktionierung, z.B. durch Kraterbildung, entstehen kann. Abhängigkeiten der Probenbeschaffenheit und Kontaminationen können über Vergleichsmessungen mit anderen Standardmaterialien wie dem Rutgers <sup>53</sup>Mn-Standard [20, 25] ausgeschlossen werden.

### **Zusammenfassung und Ausblick**

In dieser Arbeit wurde erfolgreich ein Beschleuniger-Massenspektrometer für mittelschwere Radionuklide am Kölner FN-Tandembeschleuniger berechnet, aufgebaut und getestet. Es konnte gezeigt werden, dass die Dedizierung für mittelschwere Radionuklide erfolgreich war.

Die ionenoptischen Komponenten konnten, ohne die bestehenden Aufbauten zu stören, in die Anlage integriert werden. Durch eine isotopenspezifische Energieverlust-Messung mit einer Degrader-Folie in Kombination mit einem elektrostatischen Analysierer konnte ein sehr hoher <sup>53</sup>Cr Isobarentrennungsfaktor bei der <sup>53</sup>Mn Isobarentrennung größer 10<sup>3</sup> erreicht werden, ohne die Filterung des ionischen Untergrunds zu reduzieren. Mit einem 2-Anoden-Gasionisationsdetektor wurde ein abschließender Isobarentrennungsfaktor von 10<sup>3</sup> erreicht.

Das Leistungsspektrum von Cologne-AMS konnte damit um (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)–Isotopenverhältnismessungen im Bereich 10<sup>-9</sup> bis 10<sup>-12</sup> erweitert werden. Das erreichte Detektionslimit von  $C_L = 7,20 \times 10^{-13}$  ist trotz der niedrigen Ionenenergien mit anderen Forschungseinrichtungen vergleichbar, die über Tandembeschleuniger mit höherer Terminalspannung verfügen. An der ANU wird mit einem 15 MV Beschleuniger ein Detektionslimit von  $C_L = 3,2 \times 10^{-12}$  erreicht [25].

Die erreichte mittlere fehlernormalisierte Sensitivität ist für Messungen von 600 s  $\langle S_{600s,10\%} \rangle = 3,35 \times 10^{-10}$ . Der Variationskoeffizient dieser ersten Testmessungen ist v=29,6%. Die Messung von Proben mit Isotopenverhältnissen im Bereich von  $10^{-13}$ mit 50% Fehler ist in wenigen Stunden möglich. Für eine bessere Sensitivität muss die Transmission erhöht werden. Eine Steigerung der Sensitivität um eine Größenordnung wird dabei erreichbar sein, wenn an folgenden Aspekten gearbeitet wird: Transmission der NE-Seite, Reduktion der Coulombexplosion in der Stripperfolie durch Ergänzung um Gasstripper mit niedrigen Drücken, Systemoptimierung mit Schlitzen an Waistpunkten des 90°-Analysiermagneten II, automatisierte Scans der Detektor rROI Counts zu Optimierung des Systems, Vergrößerung des Detektor-Eintrittsfensters, Verwendung eines Detektors mit höherer Anodensegmentierung, Winkelmessung im Gasionisationsdetektor in radialer Ebene mit gesplitteten Anoden und in axialer Ebene über Zeitunterschiede der Signale [62] und die Inbetriebnahme des gasgefüllten Magneten zur Erhöhung der Transmission.

Durch die Testmessungen mit <sup>41</sup>Ca wurde das Leistungsspektrum von CologneAMS zusätzlich um (<sup>41</sup>Ca/<sup>40</sup>Ca)–Isotopenverhältnismessungen erweitert. Dabei wurde ein Detektionslimit von  $C_L < 5,32 \times 10^{-13}$  erreicht. Das Ziel des SFB-1211 "Earth - Evolution at the Dry Limit" <sup>53</sup>Mn-Messungen von Mikro-Meteoriten bis Ende 2017 durchführen zu können ist damit erreicht. Um Überdeckungsdatierungen aus <sup>53</sup>Mn/<sup>3</sup>He-Verhältnissen zu ermöglichen, müssen (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Isotopenverhältnisse im Bereich  $10^{-11}$  bis  $10^{-13}$  aus der *in-situ* <sup>53</sup>Mn Produktion gemessen werden können [26, 18]. Mit den Aspekten zur Verbesserung des AMS-Systems ist dieses Ziel des SFB-1211 bis Ende 2019 erreichbar.

Ein weiterführendes <sup>41</sup>Ca-Projekt ist die radiologische Charakterisierung des Radionuklid-Inventars von kerntechnischen Anlagen in der Nachbetriebs- und Stillegungsphase [165]. Für dieses Projekt wird das <sup>41</sup>Ca-Inventar in Betonproben aus der Nähe des Containments gemessen. Die Proben können als Fluorid an beiden Beschleunigern von CologneAMS gemessen werden. Eine weitere Messreihe mit Hydridproben wird am FN-Tandembeschleuniger durchgeführt.

Das erste <sup>60</sup>Fe-Projekt ist die Messung von (<sup>60</sup>Fe/Fe)-Isotopenverhältnissen in Vivianit aus einem Seesediment-Bohrkern des El'gygytgyn unter Verwendung des gasgefüllten Magneten. Vergleichbar sind die Messungen mit den Messungen der (<sup>60</sup>Fe/Fe)-Isotopenverhältnisse in Meersedimenten [166, 167].

### Anhang A.

# Degrader-Folie und elektrostatischer Analysierer

#### Ladungszustandsverteilungen

Tabelle 27.	: Ladungs	zustär	ide, Ei	nergie	n und	Magnetfelde	er für ( <sup>53</sup> Mn	/ <sup>55</sup> Mn)-M	lessungen.
Injektior	n als MnÖ	mit E <sub>I</sub>	<sub>nj</sub> =89,4	4 keV.					
	-		_			14 11 Fo/ 1			

Isotop	$U_T$	Ζ	Α	q [e]	Yield [%]	E [MeV]	<i>B</i> [T]
<sup>53</sup> Mn	9,28	25	53	5	2	53,60	1,3952
				6	10	62,88	1,2593
				7	21	72,16	1,1563
				8	29	81,44	1,0749
				9	23	90,72	1,0084
				10	11	100,00	0,9528
				11	3	109,28	0,9055
				12	1	118,56	0,8646
<sup>55</sup> Mn	9,28	25	55	5	2	53,66	1,4221
				6	9	62,94	1,2835
				7	23	72,22	1,1784
				8	29	81,50	1,0954
				9	22	90,78	1,0276
				10	11	100,06	0 <i>,</i> 9709
				11	3	109,34	0,9227
				12	1	118,62	0,8810

Isotop	$U_T$	Ζ	Α	q [e]	Yield [%]	E [MeV]	<i>B</i> [T]
<sup>60</sup> Fe	9,28	26	60	4	1	44,52	1,6911
				5	3	53,80	1,4872
				6	11	63,08	1,3420
				7	22	72,36	1,2320
				8	28	81,64	1,1451
				9	22	90,92	1,0741
				10	10	100,20	1,0148
				11	3	109,48	0,9644
<sup>56</sup> Fe	9,28	26	56	4	0	44,41	1,6318
				5	2	53,69	1,4354
				6	9	62,97	1,2954
				7	21	72,25	1,1893
				8	28	81,53	1,1055
				9	23	90,81	1,0371
				10	12	100,09	0 <i>,</i> 9799
				11	4	109,37	0,9312
				12	1	118,65	0,8891

Tabelle 28.: Ladungszustände, Energien und Magnetfelder für ( $^{60}$ Fe/Fe)-Messungen. Injektion als FeO mit  $E_{Inj}$ =89,4 keV.

#### Ideale Foliendicke für (<sup>53</sup>Mn/<sup>55</sup>Mn)-Isotopenverhältnismessungen

Berechnung der idealen Foliendicke nach Gleichung 1.3 mit dem Energieübertragungskoeffizienten  $\mu_E$  für <sup>53</sup>Mn und <sup>53</sup>Cr aus Tab. 3.

1. Ordnung:

$$d = \frac{20000}{152 \cdot q + 1765}$$

2. Ordnung:

$$d = \frac{60000 \cdot q + 80000}{152 \cdot q^2 + 5295 \cdot q + 6756}$$

3. Ordnung:

$$d = \frac{100000 \cdot q + 240000}{152 \cdot q^2 + 8825 \cdot q + 20268}$$

4. Ordnung:

$$d = \frac{140000 \cdot q + 480000}{152 \cdot q + 12355 \cdot q + 40536}$$

5. Ordnung:

$$d = \frac{180000 \cdot q + 800000}{152 \cdot q^2 + 15885 \cdot q + 67560}$$

Ordn	ung	Ladungszustände:								
Isotop		$13^{+}$	14+	$15^{+}$	$16^{+}$	$17^{+}$	$18^{+}$	$19^{+}$	$20^{+}$	$21^{+}$
<sup>53</sup> Mn	1	5,35	5,14	4,94	4,77	4,60	4,44	4,30	4,16	4,03
	2	8,49	8,31	8,14	7,98	7,82	7,67	7,52	7,38	7,24
	3	9 <i>,</i> 58	9,45	9,31	9,18	9,06	8,93	8,81	8,70	8,58
	4	10,14	10,03	9,92	9,81	9,71	9,61	9,51	9,41	9,32
	5	10,48	10,38	10,29	10,20	10,12	10,03	9 <i>,</i> 95	9,86	9,78

Tabelle 29.: Ideale Foliendicke für <sup>53</sup>Mn Isotopenverhältnismessungen nach Ordnung und Ladungszustand für 100 MeV Ionenenergie.

#### Ideale Foliendicke für

#### (<sup>60</sup>Fe/Fe)-Isotopenverhältnismessungen

Berechnung der idealen Foliendicke nach Gleichung 1.4 mit dem Energieübertragungskoeffizienten  $\mu_E$  für <sup>60</sup>Fe und <sup>60</sup>Ni aus Tab. 3.

1. Ordnung:

$$d = \frac{25000}{341(q-1) + 2375}$$

2. Ordnung:

$$d = \frac{25000(3(q-2)+2)}{341(q-2)^2 + 7466(q-2) + 4750}$$

3. Ordnung:

$$d = \frac{25000(5(q-3)+3)}{341(q-3)^2 + 12216(q-3) + 7125}$$

4. Ordnung:

$$d = \frac{25000(7(q-4)+4)}{341(q-4)^2 + 16966(q-4) + 11875}$$

5. Ordnung:

$$d = \frac{25000(9(q-5)+5)}{341(q-5)^2 + 21716(q-5) + 11875}$$

Tabelle 30.: Ideale Foliendicke für (<sup>60</sup>Fe/Fe)-Isotopenverhältnismessungen nach Ordnung und Ladungszustand für 100 MeV Ionenenergie.

Ordnung		Ladungszustände:								
Isotop	-	$13^{+}$	$14^{+}$	$15^{+}$	$16^{+}$	$17^{+}$	$18^{+}$	$19^{+}$	$20^{+}$	$21^{+}$
<sup>60</sup> Fe	1 2 3 4	3,87 6,83 8,11 8,72	3,67 6,62 7,93 8,58	3,50 6,43 7,77 8,45	3,34 6,25 7,60 8,32	3,19 6,07 7,45 8,19	3,06 5,91 7,30 8,06	2,94 5,76 7,16 7,94	2,82 5,61 7,02 7,82	2,72 5,47 6,89 7,71
	5	9,28	9,15	9,03	8,90	8,78	8,67	8,56	8,45	8,34

### Anhang B.

### lonenoptik

Der LIMIOPTIC2-Code für die Ionenoptik des gesamten Strahltransportsystems zu AMS-Messungen am Kölner FN-Tandembeschleuniger. Die Darstellung der Ionenoptik ist in Abb. 15 zu finden. LIMIOPTIC2 Version: 2013-12-20

```
# MC-SNICS ####
AddDrift(1, 1, 0.0146)
AddThinLens(0.092,0.092,68)
AddDrift(1, 1, 0.0146)
AddDrift(1,1,0.1787)
AddThinLens(0.0967,0.0967,68)
AddDrift(1,1,0.1787)
# ESA ####
AddDrift(1,1,.435)
AddESD(100,1,0.01570796,0.435,0.435,0,45)
AddDrift(1,1,0.435)
AddWaist(); Name("WAIST"); AddSlit(0,20,0,20)
# 90 Grad Magnet ####
AddDrift(1,1,0.870)
AddEdgeFocusing(0.435, 3.6068,-0.01, 50)
AddMSA(10, 1, 0.435, math.radians(90.)/10., 50)
AddEdgeFocusing(0.435, 3.6068,-0.01, 50)
AddDrift(1,1,0.870)
AddWaist()
AddSlit(0,20,0,20)
# Vorbeschleunigung ####
AddDrift(1,1,0.656)
AddVBFN(15.e3,75.e3,0.342)
AddDrift(1,1,0.617)
```

AddQuadrupolAxFoc(10,1,12.045,0.0150,60)

```
AddQuadrupolRadFoc(10,1,11.555,0.0300,60)
AddQuadrupolAxFoc(10,1,12.045,0.0150,60)
AddDrift(1,1,1.448)
# Quellenkasten ####
AddDrift(1,1,1.103)
# 20 GradMagnet ####
AddDrift(1,1,0.56)
#Ende Magnet ####
AddDrift(1,1,0.637)
# EL I ####
AddThinLens(0.835,0.835,100)
# Blende ####
AddDrift(1,1,1.308)
AddDrift(1,1,1.019)
# EL II ####
AddThinLens(0.33,0.33,100)
AddDrift(1,1,.503)
AddDrift(1,1,0.3)
# EL IV ####
AddThinLens(0.45,0.45,100)
AddDrift(1,1,.37)
# Tandem ####
AddFNAccNeu(9.5e6, 75000, 10, b = 0.57, b1 = -1., b2 = -1.,
  D1 = .088, factor1 = 1., factor2 = 1., beamprofile = False)
# Quadrupol-Dublett ####
AddDrift(1, 1, .9)
AddQuadrupolAxFoc(10, 1,3.8402, .315/10., 30)
AddDrift(1, 1, .02)
AddQuadrupolRadFoc(10, 1, 3.9305, .315/10., 30)
AddDrift(1, 1, 2.45)
# Objektshlitz erster 90 Grad Magnet ####
AddSlit(0,30,0,30)
AddDrift(1, 1, 2.92993)
AddWaist()
AddSlit(0,20,0,20)
# Zweiter 90 Grad Magnet ####
AddDrift(1, 1,2.2)
AddEdgeFocusing(1.02, 0.4625122517784973, .5, 60)
AddMSA(10, 1, 1.1, math.radians(90.)/10., 60)
AddEdgeFocusing(1.02, 0.4625122517784973, .5, 60)
```

```
AddDrift(1, 1, 2.2)
AddWaist()
AddSlit(0,20,0,20)
# Quadrupol-Triplett ####
AddDrift(1, 1, 3.15)
AddQuadrupolRadFoc(10, 1,4.84, .300/10, 30)
AddQuadrupolAxFoc(10, 1,8.99, .300/10, 30)
AddQuadrupolRadFoc(10, 1,4.84,.300/10, 30)
AddDrift(1, 1,3.15)
AddWaist()
AddSlit(0,10,0,10)
# ESA ####
AddDrift(1, 1,0.775)
AddQuadrupolRadFoc(10, 1,9.81, .300/10, 30)
AddQuadrupolAxFoc(10, 1,7.06, .300/10, 30)
AddDrift(1, 1, .2)
AddESD(10, 1, math.radians(30)/10., 3.5, 1.e9, 0., 15)
AddDrift(1, 1, .2)
AddQuadrupolAxFoc(10, 1,7.06, .300/10, 30)
AddQuadrupolRadFoc(10, 1,9.81, .300/10, 30)
AddDrift(1, 1, 0.775)
AddWaist()
AddSlit(0,10,0,10)
# ToF-System ####
AddDrift(1, 1, .297)
# ToF-Start-Detektor ####
AddDrift(1, 1, 2.028)
AddQuadrupolRadFoc(10, 1,7.42, .300/10, 36.5)
AddQuadrupolAxFoc(10, 1,7.33, .300/10, 36.5)
AddDrift(1, 1, 1.234)
# ToF-Stop-Detektor ####
AddDrift(1, 1, .584)
# 135 Grad Magnet
AddDrift(1, 1, 0.2)
AddWaist()
AddSlit(0,10,0,10)
AddDrift(1, 1, 2.04)
# Gasionisationsdetektor ####
```

## Anhang C.

### **Projektil X-Ray AMS**



Abbildung 50.: PXAMS Messung der  $K^*_{\alpha}$  und  $K^*_{\beta}$  Übergänge von <sup>56</sup>Fe und <sup>58</sup>Ni.



Abbildung 51.: Energiespektrum der <sup>55</sup>Mn Ionen bei der PXAMS Messung.

### Anhang D.

# $(^{41}Ca/^{40}Ca)$ -Messung im 6<sup>+</sup> Ladungszustand bei $U_T$ =8,500 MV



Abbildung 52.: C16 Messung  $C=2,58 \times 10^{-11}$ .

Die Messung des C16 Standards [162] mit einem nominellen Isotopenverhältnis von  $C_s$ =1,155×10<sup>-10</sup> lieferte mit N(<sup>41</sup>Ca)<sub>rROI</sub>=266 Detektorereignissen in 620 s und einem mittleren <sup>40</sup>Ca Ionenstrom von 16 nA im 6<sup>+</sup> Ladungszustand ein Isotopenverhältnis von C=2,58×10<sup>-11</sup> mit einen Korrekturfaktor von  $n_1$ =4,48, Abb. 52. Gemessen wurde ohne Blende hinter dem 90°-Analysiermagneten II bei einem Detektordruck von 134 mbar.



Abbildung 53.: Ca-Blank Messung  $C_B$ =2,92×10<sup>-12</sup>.

Die Messung eines Blanks bei einem mittleren <sup>40</sup>Ca Ionenstrom von 6 nA im 6<sup>+</sup> Ladungszustand lieferte in 604 s N(<sup>41</sup>K)<sub>rROI</sub>=11 Detektorereignisse. Das resultierende unkorrigierte Isotopenverhältnis ist  $C_B=2,92\times10^{-12}$ . Das mit dem Korrekturfaktor  $n_1$  korrigierte Isotopenverhältnis ist damit  $C_{n_1}=1,31\times10^{-11}$ , Abb. 53. Gemessen wurde ohne Blende hinter dem 90°-Analysiermagneten II bei einem Detektordruck von 134 mbar.

# Anhang E.

# 135°-Magnet

Spezifikationen	
Polform	С
Magnetische Flussdichte	1,25 T
Ablenkradius	900 mm
Ablenkwinkel	135°
Eingangswinkel	0°
Ausgangswinkel	0°
Polabstand	50 mm
Polbreite	300 mm
Seitenprofil	scharf
Eingangsprofil	approx. Rogowsky
Ausgangsprofil	approx. Rogowsky
Polmaterial	XC06
Jochmaterial	XC06
Radiale Feldhomogenität	$4\cdot 10^{-4}$ Tm auf $\pm 50$ mm
Spule	11.0 x 11.0 mm <sup>2</sup> / id=6 mm
Windungen pro Spule	140
Kühlung	Wasser
Druckabfall	4 bar
Wasserfluss	15,2 l/min
Wassertemperaturanstieg	11,8 °C
Vakuumkammer	O-Ring gedichtet
Kammermaterial	AISI 304
Flanschtyp	CF300
Viewingports	2
Radialports	5 je 22,5°
Maximalstrom	210 A
Maximalspannung	80 V
Gesamtbreite	1.200 mm
Gesamthöhe	666 mm
Gesamtgewicht	14.000 kg
Maximales Einzelteilgewicht	2.763 kg
Kosten	129.410,00 Euro

Tabelle 31.: Technische Daten des Kölner 135°-Magneten.

# Abbildungsverzeichnis

1.	AMS-System	3
2.	Nuklidkarte Si bis Ca	6
3.	Nuklidkarte Mn bis Fe	7
4.	Ladungszustandsverteilungen	9
5.	Die fehlernormalisierte Sensitivität	15
6.	Messdauer und Effizienz	16
7.	Energieverlust pro Foliendicke	18
8.	Energiestraggling pro Foliendicke	19
9.	Berechnung der idealen Foliendicke	21
10.	Isobarentrennung und Transmission	23
11.	ToF-Konfigurationen mit Tilted-Foil-Geometrie	25
12.	Differentieller Energieverlust im Detektorgas	30
13.	(E/q)-Interferenzen bei Messung mit Degrader-Folie und ESA $\ldots$ .	32
14.	Chronologie der Hochenergie-Massenspektrometer-Designs	36
15.	Ionenoptik des AMS-Systems	39
16.	Achromatizität des Hochenergie-Massenspektrometers	41
17.	Ionenoptik der Isobarentrennung mit Degrader-Folie und ESA	42
18.	Ionenoptik der Isobarentrennung mit Degrader-Folie und ToF	43
19.	Ionenoptik der Isobarentrennung mit gasgefülltem Magneten	44
20.	Simulation zum Ablenkwinkel eines gasgefüllten Magneten	45
21.	Projektanalyse Big-Karl	46
22.	Übersicht Kontrollpult	49
23.	Übersicht des gesamten Hochenergie-Massenspektrometers	51
24.	Übersicht des Messaufbaus mit 90°-Analysiermagnet II	54
25.	Silizium-Detektor auf Positioniertisch	56
26.	Übersicht des Messaufbaus mit 30°-ESA	59
27.	Übersicht des Messaufbaus mit ToF und Gasionisationsdetektor	62
28.	Time-of-Flight-Detektor	65
29.	2-Anoden-Gasionisationsdetektor	66
30.	Bragg-Detektor	67
31.	Energieverteilung der Ionen nach dem NE-ESA	70
32.	Massenspektrum der Ionen nach dem NE-Magneten	71
33.	Massenspektrum bei ( $^{53}\mathrm{Mn}/^{55}\mathrm{Mn}$ )–Isotopenverhältnismessungen	71
34.	Maschinenuntergrund des FN-Tandembeschleunigers	72

35.	Magnetische Steifigkeit-Interferenzen	73
36.	Emittanzmessung mit der Doppelschlitzmethode	74
37.	Parametrisierung der Linsenströme	76
38.	Messung der Isobarentrennung mit Degrader-Folie und ESA	77
39.	Relative Energieverlust-Differenz von $^{54}$ Fe und $^{54}$ Cr $\ldots$	78
40.	Isobarentrennungsvermögen mit Degrader-Folie und ToF	79
41.	Detektorauflösung bei verschiedenen Gasdrücken	81
42.	Isobarentrennungsvermögen des 2-Anoden-Gasionisationsdetektors	85
43.	Isobarentrennungsvermögen des Bragg-Detektors	86
44.	PXAMS Aufbau	87
45.	PXAMS Messung der $K^*_{\alpha}$ und $K^*_{\beta}$ Übergänge von <sup>55</sup> Mn und <sup>53</sup> Cr	88
46.	Transmissionstest mit <sup>54</sup> Fe	91
47.	$({}^{41}Ca/{}^{40}Ca)$ -Isotopenverhältnissmessung im 7 <sup>+</sup>	97
48.	Isobarentrennung mit verschiedenen Degrader-Foliendicken	100
49.	$(^{53}Mn)$ -Isotopenverhältnissmessung	103
50.	PXAMS Messung der $K^*_{\alpha}$ und $K^*_{\beta}$ Übergänge von <sup>56</sup> Fe und <sup>58</sup> Ni	117
51.	Energiespektrum der $^{55}$ Mn Ionen bei der PXAMS Messung	117
52.	$({}^{41}Ca/{}^{40}Ca)$ -Isotopenverhältnismessung im $6^+$	119
53.	Ca-Blank-Isotopenverhältnismessung im $6^+$	120

# Tabellenverzeichnis

1.	$(^{53}Mn)$ -Messungen verschiedener Forschungseinrichtungen .	10
2.	Ionenströme bei ( $^{53}$ Mn/ $^{55}$ Mn)-Messungen in der Literatur	17
3.	Energieübertragungskoeffizient $\mu_E$	20
4.	Übersicht gasgefüllter Magneten	27
5.	Technische Daten des Kölner 135°-Magneten	28
6.	Literaturwerte der X-Ray Emissionslinien	34
7.	Technische Daten der ionenoptischen Hauptkomponenten	38
8.	Relative- und Absolute-Sollbahnlängen des AMS-Systems	40
9.	Technische Daten von Big-Karl	47
10.	Radiusmessung des 90°-Analysiermagneten II	75
11.	Ladungszustände von <sup>55</sup> Mn	75
12.	Detektorauflösung ohne passiven Absorber ${}^{54}$ Fe/ ${}^{54}$ Cr	82
13.	Detektorauflösung mit passivem Absorber <sup>54</sup> Fe/ <sup>54</sup> Cr	83
14.	Detektorauflösung mit passiven Absorbern <sup>54</sup> Fe/ <sup>54</sup> Cr	84
15.	Detektorauflösung mit passiven Absorbern <sup>58</sup> Fe/ <sup>58</sup> Ni	84
16.	Bragg-Detektorauflösung ohne passiven Absorber <sup>54</sup> Fe/ <sup>54</sup> Cr	86
17.	Gemessene Energien der X-Ray Emissionslinien	89
18.	Effizienz Messungen PXAMS	90
19.	<sup>40</sup> Ca-Ladungszustände	94
20.	<sup>41</sup> Ca-Rate bezüglich Terminalspannung	95
21.	Einstellungen der ( $^{41}$ Ca/ $^{40}$ Ca)-Messungen im 6 <sup>+</sup>	98
22.	<sup>55</sup> Mn-Ladungszustände	99
23.	$^{53}$ Cr-Ladungszustände mit 2 µm Degrader-Folie	100
24.	$^{53}$ Cr-Ladungszustände mit 4 µm Degrader-Folie	101
25.	$(^{53}Mn)$ -Messungen im 10 <sup>+</sup>	105
26.	Einstellungen der ( $^{53}$ Mn/ $^{55}$ Mn)-Messungen im 10 $^+$	106
27.	Ladungszustände, Energien und Magnetfelder für <sup>53</sup> Mn-Messungen	109
28.	Ladungszustände, Energien und Magnetfelder für <sup>60</sup> Fe-Messungen .	110
29.	Ideale Foliendicke für ( $^{53}$ Mn/ $^{55}$ Mn)-Messungen	111
30.	Ideale Foliendicke für ( <sup>60</sup> Fe/Fe)-Messungen	111
31.	Detail Daten des Kölner 135°-Magneten	121

### Literaturverzeichnis

- L. K. Fifield, "Accelerator mass spectrometry and its applications," *Reports on Progress in Physics*, vol. 62, pp. 1223–1274, 1999.
- [2] A. J. T. Jull and G. S. Burr, "Accelerator mass spectrometry: Is the future bigger or smaller?," *Earth and Planetary Science Letters*, vol. 243, no. 3-4, pp. 305– 325, 2006.
- [3] W. Kutschera, "Applications of accelerator mass spectrometry," *International Journal of Mass Spectrometry*, vol. 349-350, no. 1, pp. 203–218, 2013.
- [4] A. E. Litherland, "Accelerator Mass Spectrometry," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 5, pp. 100–108, 1984.
- [5] W. Henning, W. Kutschera, M. Paul, R. K. Smither, E. J. Stephenson, and J. L. Yntema, "ACCELERATOR MASS SPECTROMETRY AND RADIOISOTOPE DETECTION AT THE ARGONNE FN TANDEM FACILITY," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 184, pp. 247–268, 1981.
- [6] H.-A. Synal, "Developments in accelerator mass spectrometry," International Journal of Mass Spectrometry, vol. 349-350, pp. 192–202, 2013.
- [7] P. Collon, W. Bauder, M. Bowers, W. Lu, K. Ostdiek, and D. Robertson, "Accelerator Mass Spectrometry at the Nuclear Science Laboratory: Applications to Nuclear Astrophysics," *Physics Procedia*, vol. 66, pp. 481–488, 2015.
- [8] M. Suter, "Accelerator mass spectrometry: State of the art in 1990," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 52, no. 3-4, pp. 211–223, 1990.
- [9] M. G. Klein, A. Dewald, A. Gottdang, S. Heinze, and D. J. W. Mous, "A new HVE 6MV AMS system at the University of Cologne," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 269, no. 24, pp. 3167–3170, 2011.
- [10] A. Dewald, S. Heinze, J. Jolie, A. Zilges, T. J. Dunai, J. Rethemeyer, M. Melles, M. Staubwasser, B. Kuczewski, J. Richter, U. Radtke, F. von Blanckenburg,

and M. Klein, "CologneAMS, a dedicated center for accelerator mass spectrometry in Germany," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 294, pp. 18–23, 2013.

- [11] A. Dewald, S. Heinze, C. Feuerstein, C. Müller-Gatermann, A. Stolz, M. Schiffer, G. Zitzer, T. J. Dunai, J. Rethemeyer, M. Melles, H. Wiesel, and F. von Blankenburg, "The first year of operation of CologneAMS; performance and developments," *EPJ Web of Conferences* 63, vol. 03006, pp. 3–6, 2013.
- [12] C. Feuerstein, "Improvement of measurement capabilities at the Cologne Accelerator Mass Spectrometer," *Dissertation, Universität zu Köln*, 2016.
- [13] C. Ouellet and B. Singh, "Nuclear Data Sheets for A = 32," *Nuclear Data Sheets*, vol. 112, no. 9, pp. 2199–2355, 2011.
- [14] L. K. Fifield and U. Morgenstern, "Silicon-32 as a tool for dating the recent past," *Quaternary Geochronology*, vol. 4, no. 5, pp. 400–405, 2009.
- [15] U. Morgenstern, K. L. Fifield, S. G. Tims, and R. G. Ditchburn, "Progress in AMS measurement of natural <sup>32</sup>Si for glacier ice dating," *Nuclear Instruments* and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 268, no. 7-8, pp. 739–743, 2010.
- [16] M. S. Thomsen, J. Heinemeier, P. Hornshøj, H. L. Nielsen, and N. Rud, "AC-CELERATOR MASS SPECTROMETRY APPLIED TO <sup>32</sup>Si," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 31, pp. 425–432, 1988.
- [17] W. Kutschera, I. Ahmad, and M. Paul, "Some Other Radioisotopes," Radiocarbon, vol. 34, no. 3, pp. 436–446, 1992.
- [18] T. J. Dunai, *Cosmogenic Nuclides*. Cambridge University Press, Cambridge, 2010.
- [19] H. Junde, "Nuclear Data Sheets for A = 53," Nuclear Data Sheets, vol. 110, no. 11, pp. 2689–2814, 2009.
- [20] M. Poutivtsev, "Extraterrestrisches <sup>53</sup>Mn in hydrogenetischen Mangankrusten," Dissertation, Technische Universität München, 2007.
- [21] B. Heisinger, M. Niedermayer, F. J. Hartmann, G. Korschinek, E. Nolte, G. Morteani, S. Neumaier, C. Petitjean, P. Kubik, H.-A. Synal, and S. Ivy-Ochs, "In-situ production of radionuclides at great depths," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 123, no. 1-4, pp. 341–346, 1997.

- [22] T. Fujioka, L. K. Fifield, J. O. Stone, P. M. Vasconcelos, S. G. Tims, and J. Chappell, "In situ cosmogenic <sup>53</sup>Mn production rate from ancient low-denudation surface in tropic Brazil," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 268, no. 7-8, pp. 1209–1213, 2010.
- [23] M. Poutivtsev, I. Dillmann, T. Faestermann, K. Knie, G. Korschinek, J. Lachner, A. Meier, G. Rugel, and A. Wallner, "Highly sensitive AMS measurements of <sup>53</sup>Mn," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 268, no. 7-8, pp. 756–758, 2010.
- [24] K. Knie, T. Faestermann, and G. Korschinek, "AMS at the Munich gas-filled analyzing magnet system GAMS," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 123, no. 1-4, pp. 128–131, 1997.
- [25] L. G. Gladkis, L. K. Fifield, C. R. Morton, T. T. Barrows, and S. G. Tims, "Manganese-53: Development of the AMS technique for exposure-age dating applications," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 259, no. 1, pp. 236–240, 2007.
- [26] J. M. Schaefer, T. Faestermann, G. F. Herzog, K. Knie, G. Korschinek, J. Masarik, A. Meier, M. Poutivtsev, G. Rugel, C. Schlüchter, F. Serifiddin, and G. Winckler, "Terrestrial manganese-53 - A new monitor of Earth surface processes," *Earth and Planetary Science Letters*, vol. 251, no. 3-4, pp. 334–345, 2006.
- [27] T. J. Dunai, "Earth Evolution at the Dry Limit," *Funding Proposal, Germany*, 2016.
- [28] E. Browne and J. K. Tuli, "Nuclear Data Sheets for A = 60," Nuclear Data Sheets, vol. 114, no. 12, pp. 1849–2022, 2013.
- [29] J. Feige, "The connection between the local bubble and the <sup>60</sup>Fe anomaly in the deep sea hydrogenetic ferromanganese crust," *Magisterarbeit*, Universität Wien, 2010.
- [30] P. W. E. Gartenmann, "Untersuchung von anthropogenem <sup>60</sup>Fe und anderen mittelschweren Radionukliden mit Beschleunigermassenspektrometrie," *Dissertation, ETH Zürich*, 1999.
- [31] K. Knie, A. Elhardt, T. Faestermann, G. Korschinek, C. Lierse, G. Rugel, and A. Stippschild, "Search for A = 60 fragments from neutron-induced fission with accelerator mass spectrometry," *Nuclear Physics A*, vol. 723, no. 3-4, pp. 343–353, 2003.

- [32] A. Wallner, J. Feige, N. Kinoshita, M. Paul, L. K. Fifield, R. Golser, M. Honda, U. Linnemann, H. Matsuzaki, S. Merchel, G. Rugel, S. G. Tims, P. Steier, T. Yamagata, and S. R. Winkler, "Recent near-Earth supernovae probed by global deposition of interstellar radioactive <sup>60</sup>Fe," *Nature*, vol. 532, no. 7597, pp. 69–72, 2016.
- [33] M. Schiffer, R. Altenkirch, C. Feuerstein, C. Müller-Gatermann, G. Hackenberg, S. Herb, P. Bhandari, S. Heinze, A. Stolz, and A. Dewald, "A dedicated AMS setup for medium mass isotopes at the Cologne FN tandem accelerator," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 406, pp. 287–291, 2017.
- [34] U. Zoppi, "Isobar Suppression in Accelerator Mass Spectrometry," Dissertation, Swiss Federal Institute of Technology Zürich, 1993.
- [35] R. O. Sayer, "Semi-empirical formulas for heavy-ion stripping data," *Revue de Physique Appliquee*, vol. 12, no. 10, pp. 1543–1546, 1977.
- [36] S. Matteson, D. K. Marble, L. S. Hodges, J. Y. Hajsaleh, A. M. Arrale, M. R. McNeir, J. L. Duggan, F. D. McDaniel, and J. M. Anthony, "MOLECULAR-INTERFERENCE-FREE ACCELERATOR MASS SPECTROMETRY," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 45, pp. 575–579, 1990.
- [37] C. Vockenhuber, I. Ahmad, R. Golser, W. Kutschera, V. Liechtenstein, A. Priller, P. Steier, and S. Winkler, "Accelerator mass spectrometry of heavy longlived radionuclides," *International Journal of Mass Spectrometry*, vol. 223-224, pp. 713–732, 2003.
- [38] K. Dong, H. Hu, X. Wang, C. Li, M. He, Z. Li, S. Wu, J. Liu, G. Zheng, H. Li, Z. Chen, G. Liu, J. Yuan, and S. Jiang, "Further study on highly sensitive AMS measurement of <sup>53</sup>Mn," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 285, pp. 57–60, 2012.
- [39] H.-D. Betz, "Charge States and Charge-Changing Cross Sections of Fast Havy Ions Penetrating Throug Gaseous and Solid Media," *Reviews of Modern Physiks*, vol. 44, no. 8, pp. 465–539, 1972.
- [40] M. Schiffer, A. Dewald, C. Feuerstein, R. Altenkirch, A. Stolz, and S. Heinze, "A dedicated AMS setup for <sup>53</sup>Mn/<sup>60</sup>Fe at the Cologne FN tandem accelerator," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 361, pp. 95–99, 2015.
- [41] X. Wang, M. He, X. Ruan, Y. Xu, H. Shen, L. Du, C. Xiao, K. Dong, S. Jiang, X. Yang, X. Lan, S. Wu, Q. Zhao, L. Cai, and F. Pang, "Measurement of
<sup>59</sup>Ni and <sup>63</sup>Ni by accelerator mass spectrometry at CIAE," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 361, pp. 34–38, 2015.

- [42] J. Lindhard and A. H. Sørensen, "Relativistic theory of stopping for heavy ions," *Physical Review A*, vol. 53, no. 4, pp. 2443–2456, 1996.
- [43] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, and J. P. Biersack, "SRIM The stopping and range of ions in matter (2010)," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 268, no. 11-12, pp. 1818–1823, 2010.
- [44] O. B. Tarasov and D. Bazin, "LISE++: Radioactive beam production with inflight separators," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 266, no. 19-20, pp. 4657– 4664, 2008.
- [45] W. H. Bragg and R. Kleeman, "XXXIX. On the *α* Particles of Radium, and their Loss of Range in passing through various Atoms and Molecules," *Philosophical Magazine Series 6*, vol. 10, no. 57, pp. 318–340, 1905.
- [46] F. Besenbacher, J. Heinemeier, P. Hvelplund, and H. Knudsen, "Energy-loss straggling for protons and helium ions," *Physics Letters A*, vol. 61, no. 1, pp. 75–77, 1977.
- [47] Q. Yang, D. J. O'Connor, and Z. Wang, "Empirical formulae for energy loss straggling of ions in matter," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 61, no. 2, pp. 149–155, 1991.
- [48] J. J. Ramirez, R. M. Prior, J. B. Swint, A. R. Quinton, and R. A. Blue, "Energy Straggling of Alpha Particles through Gases," *Physical Review*, vol. 179, no. 2, pp. 310–314, 1969.
- [49] P. Sigmund, "Energy loss of charged particles to molecular gas targets," *Physical Review A*, vol. 14, no. 3, pp. 996–1006, 1976.
- [50] H. A. Bethe, "Molière's Theory of Multiple Scattering," *Physical Review Let*ters, vol. 89, no. 6, pp. 1256–1266, 1953.
- [51] J. B. Marion and B. A. Zimmerman, "Multiple Scattering of Charged Particles," *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 51, pp. 93–101, 1967.
- [52] G. Molière, "Theorie der Streuung schneller geladener Teilchen I. Einzelstreuung am abgeschirmten Coulomb-Feld," *Zeitschrift fur Naturforschung - Section A*, vol. 2, no. 3, pp. 133–145, 1947.

- [53] G. Molière, "Theorie der Streuung schneller geladener Teilchen II Mehrfachund Vielfachstreuung," Zeitschrift fur Naturforschung - Section A, vol. 3, pp. 78–97, 1948.
- [54] B. P. Nigam, M. K. Sundaresan, and T.-Y. Wu, "Theory of Multiple Scattering: Second Born Approximation and Corrections to Molière's Work," *Physical Review*, vol. 115, no. 3, pp. 491–502, 1959.
- [55] G. R. Lynch and O. I. Dahl, "Approximations to multiple Coulomb scattering," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 58, no. 1, pp. 6–10, 1991.
- [56] M. Pfeiffer, "Development of a Beam Profile Monitor / Time of Flight setup for HISPEC / DESPEC for FAIR," *Dissertation, Universität zu Köln,* 2013.
- [57] R. Anne, J. Herault, R. Bimbot, H. Gauvin, and F. Hubert, "MULTIPLE AN-GULAR SCATTERING OF HEAVY IONS (<sup>16,17</sup>O, <sup>40</sup>Ar, <sup>86</sup>Kr AND <sup>100</sup>Mo) AT INTERMEDIATE ENERGIES (20-90 MeV/u)," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 34, pp. 295–308, 1988.
- [58] K. Knie, T. Faestermann, G. Korschinek, G. Rugel, W. Rühm, and C. Wallner, "High-sensitivity AMS for heavy nuclides at the Munich Tandem accelerator," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 172, no. 1-4, pp. 717–720, 2000.
- [59] C. Vockenhuber, A. Bergmaier, T. Faestermann, K. Knie, G. Korschinek, W. Kutschera, G. Rugel, P. Steier, K. Vorderwinkler, and A. Wallner, "Development of isobar separation for <sup>182</sup>Hf AMS measurements of astrophysical interest," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 259, no. 1, pp. 250–255, 2007.
- [60] M. Martschini, J. Buchriegler, P. Collon, W. Kutschera, J. Lachner, W. Lu, A. Priller, P. Steier, and R. Golser, "Isobar separation of <sup>93</sup>Zr and <sup>93</sup>Nb at 24 MeV with a new multi-anode ionization chamber," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 361, pp. 201–205, 2015.
- [61] K. Dong, D. Zhou, Y. Xu, M. He, G. Liu, H. Hu, L. Dou, J. Liu, S. Wu, X. Wang, H. Shen, K. Li, Q. You, Y. Bao, Y. Hu, C. Jin, X. Yin, and S. Jiang, "AMS measurement of <sup>53</sup>Mn and its initial application at CIAE," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 361, pp. 58–62, 2015.

- [62] K. Knie, "Beschleunigermassenspektrometrie mit Isobarenseparation in einem dedizierten gasgefüllten Magneten," Dissertation, Technische Universität München, 1997.
- [63] G. F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, vol. 4. John Wiley & Sons, Inc., Hoboken, 2010.
- [64] G. J. Feldman and R. D. Cousins, "Unified approach to the classical statistical analysis of small signals," *Physical Review D*, vol. 57, no. 7, pp. 3873–3889, 1998.
- [65] Y. Dong and H. Junde, "Nuclear Data Sheets for A = 54," Nuclear Data Sheets, vol. 121, pp. 1–142, 2014.
- [66] R. R. Betts, "Time of fight spectrometers for heavy ions," Nuclear Instruments and Methods, vol. 162, pp. 531–538, 1979.
- [67] J. K. Kim, Y. S. Kim, G. D. Kim, H. W. Choi, H. J. Woo, S. Y. Cho, and C. N. Whang, "A TOF spectrometer for elastic recoil detection," *Nuclear Instruments* and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 140, no. 3-4, pp. 380–388, 1998.
- [68] D. Dieumegard, D. Dubreuil, and G. Amsel, "Analysis and depth profiling of deuterium with the D(<sup>3</sup>He,p)<sup>4</sup>He reaction by detecting protons at backward angles," *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 166, pp. 431–445, 1979.
- [69] C. Vockenhuber, R. Golser, W. Kutschera, A. Priller, P. Steier, K. Vorderwinkler, and A. Wallner, "The Δ-TOF detector for isobar separation at ion energies below 1 MeV/amu," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 240, no. 1-2, pp. 490– 494, 2005.
- [70] C. Vockenhuber, R. Golser, W. Kutschera, A. Priller, P. Steier, A. Wallner, and M. Bichler, "<sup>182</sup>Hf - From geophysics to astrophysics," *Nuclear Physics A*, vol. 758, pp. 340–343, 2005.
- [71] C. Vockenhuber, L. E. Erikson, L. Buchmann, U. Greife, U. Hager, D. A. Hutcheon, M. Lamey, P. Machule, D. Ottewell, C. Ruiz, and G. Ruprecht, "A transmission time-of-flight system for particle identification at a recoil mass separator at low energies," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment,* vol. 603, no. 3, pp. 372–378, 2009.
- [72] P. Bhandari, "An optimized Time of Flight (ToF) system for the AMS-setup at the FN Tandem accelerator," *Masterarbeit*, *Universität zu Köln*, 2015.

- [73] T. Orlowski, O. Forstner, R. Golser, W. Kutschera, S. Merchel, M. Martschini, A. Priller, P. Steier, C. Vockenhuber, and A. Wallner, "Comparison of detector systems for the separation of <sup>36</sup>Cl and <sup>36</sup>S with a 3-MV tandem," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 268, no. 7-8, pp. 847–850, 2010.
- [74] L. Palla, L. Castelli, C. Czelusniak, M. E. Fedi, L. Giuntini, L. Liccioli, P. A. Mandò, M. Martini, A. Mazzinghi, C. Ruberto, L. Schiavulli, E. Sibilia, and F. Taccetti, "Preliminary measurements on the new TOF system installed at the AMS beamline of INFN-LABEC," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 361, pp. 222–228, 2015.
- [75] R. Talman, "On the statistics of particle identification using ionization," *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 159, no. 1, pp. 189–211, 1979.
- [76] C. B. Fulmer and B. L. Cohen, "Equilibrium charges of fission fragments in gases," *Physical Review*, vol. 109, no. 1, pp. 94–99, 1958.
- [77] P. Armbruster, "Massenseparator f
  ür die Massentrennung von Spaltprodukten," Nukleonik, vol. 3, p. 189, 1961.
- [78] M. Paul, B. G. Glagola, W. Henning, J. G. Keller, W. Kutschera, Z. Liu, K. E. Rehm, B. Schneck, and R. H. Siemssen, "Heavy ion separation with a gas-filled magnetic spectrograph," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 277, no. 2-3, pp. 418–430, 1989.
- [79] J. Camplan, R. Meunier, and J. L. Sarrouy, "Sidonie, the new electromagnetic isotope separator at Orsay. Part I: Design and construction," *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 84, no. 1, pp. 37–44, 1970.
- [80] S. Hatori, H. Nawata, M. Ohseki, H. Matsuzaki, and T. Misawa, "Gas-filled magnet at MALT - Measurement of <sup>36</sup>Cl," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 172, pp. 211–217, 2000.
- [81] T. Aze, H. Matsuzaki, H. Matsumura, H. Nagai, M. Fujimura, M. Noguchi, Y. Hongo, and Y. Yokoyama, "Improvement of the <sup>36</sup>Cl-AMS system at MALT using a Monte Carlo ion-trajectory simulation in a gas-filled magnet," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 259, no. 1, pp. 144–148, 2007.
- [82] V. Alfimov and G. Possnert, "Computer simulation of ion-beam optics in a gas-filled magnetic spectrometer," *Nuclear Instruments and Methods in Physics*

*Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms,* vol. 223-224, pp. 180–184, 2004.

- [83] V. Alfimov, G. Possnert, and A. Aldahan, "Measurements of <sup>36</sup>Cl with a gasfilled magnet at the Uppsala tandem laboratory," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms,* vol. 259, no. 1, pp. 199–203, 2007.
- [84] U. Zoppi, P. W. Kubik, M. Suter, H.-A. Synal, H. R. von Gunten, and D. Zimmermann, "High intensity isobar separation at the Zürich AMS facility," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 92, no. 1-4, pp. 142–145, 1994.
- [85] K.-U. Miltenberger, A. M. Müller, M. Suter, H.-A. Synal, and C. Vockenhuber, "Accelerator mass spectrometry of <sup>26</sup>Al at 6 MV using AlO<sup>-</sup> ions and a gasfilled magnet," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 406, pp. 272–277, 2017.
- [86] S. Harrison, M. Hotchkis, S. McIntosh, and A. Paterson, "Proposal for a new Centre for Accelerator Science (CAS)," *Funding Proposal, Australia*, pp. 1–67, 2010.
- [87] B. R. Nielsen, "GAS FILLED MAGNET for ANSTO in Australia," Danfysik News Magazine, pp. 1–16, 2012.
- [88] D. Elmore, L. Dep, R. Flack, M. J. Hawksworth, D. L. Knies, X. Z. Ma, E. S. Michlovich, T. E. Miller, K. A. Mueller, F. A. Rickey, P. Sharma, P. C. Simms, H. J. Woo, M. E. Lipschutz, S. Vogt, M. S. Wang, and M. C. Monaghan, "The Purdue Rare Isotope Measurement Laboratory," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 92, no. 1-4, pp. 65–68, 1994.
- [89] L. K. Fifield, S. G. Tims, L. G. Gladkis, and C. R. Morton, "<sup>26</sup>Al measurements with <sup>10</sup>Be counting statistics," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 259, no. 1, pp. 178–183, 2007.
- [90] P. W. Kubik, D. Elmore, T. K. Hemmick, and W. Kutschera, "THE GAS-FILLED MAGNET: AN ISOBAR SEPARATOR FOR ACCELERATOR MASS SPECTROMETRY," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 40/41, pp. 741–744, 1989.
- [91] K. E. Rehm, C. L. Jiang, M. Paul, D. Blumenthal, J. Gehring, D. Henderson, J. Nickles, J. Nolen, R. C. Pardo, A. D. Roberts, J. P. Schiffer, and R. E. Segel, "The use of a gas-filled magnet in experiments with radioactive ion beams,"

Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol. 370, no. 95, pp. 438–444, 1996.

- [92] H. W. Fulbright, "Ionization Chambers," Nuclear Instruments and Methods, vol. 162, pp. 21–28, 1979.
- [93] A. M. Müller, M. Döbeli, M. Suter, and H.-A. Synal, "Performance of the ETH gas ionization chamber at low energy," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 287, pp. 94–102, 2012.
- [94] C. Maden, P. A. F. Anastasi, A. Dougans, S. P. H. T. Freeman, R. Kitchen, G. Klody, C. Schnabel, M. Sundquist, K. Vanner, and S. Xu, "SUERC AMS ion detection," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 259, pp. 131–139, 2007.
- [95] W. Assmann, H. Huber, C. Steinhausen, M. Dobler, H. Glückler, and A. Weidinger, "Elastic recoil detection analysis with heavy ions," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 89, pp. 131–139, 1994.
- [96] C. Kottler, M. Döbeli, F. Glaus, and M. Suter, "A spectrometer for low energy heavy ion ERDA," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 248, no. 1, pp. 155–162, 2006.
- [97] M. Suter, M. Döbeli, M. Grajcar, A. Müller, M. Stocker, G. Sun, H.-A. Synal, and L. Wacker, "Advances in particle identification in AMS at low energies," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 259, no. 1, pp. 165–172, 2007.
- [98] A. M. Müller, M. Christl, M. Döbeli, P. W. Kubik, M. Suter, and H.-A. Synal, "Boron suppression with a gas ionization chamber at very low energies (E < 1 MeV)," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 268, no. 7-8, pp. 843–846, 2010.
- [99] A. M. Müller, M. Döbeli, and H.-A. Synal, "High resolution gas ionization chamber in proportional mode for low energy applications," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 407, pp. 40–46, 2017.
- [100] J. Eberth, G. Pascovici, H. G. Thomas, N. Warr, D. Weisshaar, D. Habs, P. Reiter, P. Thirolf, D. Schwalm, C. Gund, H. Scheit, M. Lauer, P. van Duppen, S. Franchoo, M. Huyse, R. M. Lieder, W. Gast, J. Gerl, K. P. Lieb, and t. M. Colaboration, "MINIBALL A Ge detector Array for Radioactive Ion Beam

Facilities," *Progress in Particle and Nuclear Physics*, vol. 46, no. 1, pp. 389–398, 2001.

- [101] G. Hackenberg, "Entwicklung eines Gasionisationsdetektors für Schwerionen," *Bachelorarbeit, Universität zu Köln,* 2015.
- [102] T. R. Ophel, L. K. Fifield, W. N. Catford, N. A. Orr, C. L. Woods, A. Harding, and G. P. Clarkson, "The identification and rejection of energy-degraded events in gas ionization counters," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 272, no. 3, pp. 734–749, 1988.
- [103] G. M. Santos, J. C. Acquadro, R. M. Anjos, N. Added, and R. L. Neto, "A Bragg Detector Built for AMS Purposes," *Revista de Fisica Aplicada e Instrumentação*, vol. 13, no. 3, pp. 39–43, 1998.
- [104] G. Santos, J. Acquadro, P. Gomes, R. Anjos, R. Liguori Neto, N. Added, N. Medina, N. Carlin, M. Coimbra, M. di Tada, R. Cresswell, and L. K. Fifield, "The Brazilian Bragg curve detector built for AMS studies," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 172, no. 1-4, pp. 310–315, 2000.
- [105] A. M. Müller, M. Döbeli, M. Seiler, and H.-A. Synal, "A simple Bragg detector design for AMS and IBA applications," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 356-357, pp. 81–87, 2015.
- [106] C. Li, Y. Guan, S. Jiang, M. He, X. Ruan, W. Wang, D. Zhang, J. Yuan, S. Wu, and K. Dong, "Isobaric identification techniques of AMS at CIAE," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 268, no. 7-8, pp. 876–879, 2010.
- [107] K. Ostdiek, T. Anderson, W. Bauder, M. Bowers, P. Collon, R. Dressler, J. Greene, W. Kutschera, W. Lu, M. Paul, D. Robertson, D. Schumann, M. Skulski, and A. Wallner, "Towards a measurement of the half-life of <sup>60</sup>Fe for stellar and early Solar System models," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 361, pp. 638– 642, 2015.
- [108] A. Steinhof, "Use of pilot beams in accelerator mass spectrometry," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 51, no. 2, pp. 133–139, 1990.
- [109] M.-J. Nadeau, E. Vaernes, H. L. Svarva, E. Larsen, S. Gulliksen, M. Klein, and D. J. Mous, "Status of the "new" AMS facility in Trondheim," *Nuclear*

Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 361, pp. 149–155, 2015.

- [110] R. J. Cornett, Z. H. Kazi, X.-L. Zhao, M. G. Chartrand, R. J. Charles, and W. E. Kieser, "Actinide measurements by AMS using fluoride matrices," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 361, pp. 317–321, 2015.
- [111] P. Steier, "Exploring the limits of VERA: A universal facility for accelerator mass spectrometry," *Dissertation, Universität Wien*, 2000.
- [112] S. Xu, S. P. H. T. Freeman, D. Sanderson, R. P. Shanks, and K. M. Wilcken, "Cl can interfere with Al<sup>3+</sup> AMS but B need not matter to Be measurement," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 294, pp. 403–405, 2013.
- [113] L. R. Kilius, X.-L. Zhao, A. E. Litherland, and K. H. Purser, "Molecular fragment problems in heavy element AMS," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 123, no. 1-4, pp. 10–17, 1997.
- [114] L. R. Kilius, N. Baba, M. A. Garwan, A. E. Litherland, M.-J. Nadeau, J. C. Rucklidge, G. C. Wilson, and X.-L. Zhao, "AMS of heavy ions with small accelerators," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 52, no. 3-4, pp. 357–365, 1990.
- [115] W. E. Meyerhof, R. Anholt, T. K. Saylor, S. M. Lazarus, A. Little, and L. F. Chase, Jr., "K-vacancy production in heavy-ion collisions. I. Experimental results for Z≥35 projectiles\*," *Physical Review A*, vol. 14, no. 5, pp. 1653–1661, 1976.
- [116] I. D. Proctor, M. L. Roberts, J. E. McAninch, and G. S. Bench, Proof-of-Concept Development of PXAMS (Projectile X-ray Accelerator Mass Spectrometry). Internal Report, Lawrence Livermore National Laboratory, Springfield, 1996.
- [117] G. Hölzer, M. Fritsch, M. Deutsch, J. Härtwig, and E. Förster, "K<sub>α1,2</sub> and K<sub>β1,3</sub> x-ray emission lines of the 3d transition metals," *Physical Review A*, vol. 56, no. 6, pp. 4554–4568, 1997.
- [118] A. Thompson, I. Lindau, D. Attwood, Y. Liu, E. Gullikson, P. Pianetta, M. Howells, A. Robinson, K.-J. Kim, J. Scofield, J. Kirz, J. Underwood, J. Kortright, G. Williams, and H. Winick, X-RAY DATA BOOKLET, vol. 3. Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, 2009.
- [119] J. Crawford, D. Cohen, G. Doherty, and A. Atanacio, *Calculated K, L and M-shell X-ray line intensities for light ion impact on selected targets from Z=6 to 100.*

Australian Nuclear Science and Technology Organisation, Lucas Heights, 2011.

- [120] K. Taulbjerg, B. Fastrup, and E. Laegsgaard, "Heavy-Ion-Induced X-Ray Production in Solids," *Physical Review A*, vol. 8, no. 4, pp. 1814–1824, 1973.
- [121] M. O. Krause, "Atomic radiative and radiationless yields for K and L shells," *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, vol. 8, no. 2, pp. 307–327, 1979.
- [122] S. P. H. T. Freeman, R. E. Serfass, J. C. King, J. R. Southon, Y. Fang, L. R. Woodhouse, G. S. Bench, and J. E. McAninch, "Biological sample preparation and <sup>41</sup>Ca AMS measurement at LLNL," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 99, no. 1-4, pp. 557–561, 1995.
- [123] H. Artigalas, M. F. Barthe, J. Gomez, J. L. Debrun, L. Kilius, X. L. Zaho, A. E. Litherland, J. L. Pinault, C. Foulillac, P. Caravatti, G. Kruppa, and C. Maggiore, "FT-ICR with laser ablation and AIMS combined with X-ray detection, applied to the measurement of long-lived radionuclides from fission or activation: preliminary results," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 79, pp. 617–619, 1993.
- [124] M. L. Roberts, G. S. Bench, T. A. Brown, M. W. Caffee, R. C. Finkel, S. P. H. T. Freeman, L. J. Hainsworth, M. Kashgarian, J. E. McAninch, I. D. Proctor, J. R. Southon, and J. Vogel, "The LLNL AMS facility," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 123, no. 1-4, pp. 57–61, 1997.
- [125] M. He, S. Jiang, S. Jiang, Q. Chen, J. Qin, S. Wu, Y. Dong, and Z. Zhao, "Measurement of <sup>79</sup>Se and <sup>64</sup>Cu with PXAMS," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 172, pp. 177–181, 2000.
- [126] S. Winkler, L. K. Fifield, S. G. Tims, and C. R. Morton, "Improving the detection limit for <sup>182</sup>Hf," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 259, no. 1, pp. 256–259, 2007.
- [127] S. Winkler, L. K. Fifield, S. G. Tims, and J. Fernandez-Niello, "L-X-ray production cross-sections for PXAMS: Target and energy dependence for 50-200 MeV hafnium ions," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 259, no. 1, pp. 260–264, 2007.
- [128] P. Kudějová, "Two new installations for non-destructive sample analysis: PI-XE and PGAA," Dissertation, Universität zu Köln, 2005.

- [129] D. L. Youchison and M. D. Nahemow, "Ion Trajectory Analysis Program (ITAP)," Computer Physics Communications, vol. 64, no. 1, pp. 167–182, 1991.
- [130] M. Pavlovič and I. Strašík, "Supporting routines for the SRIM code," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 257, pp. 601–604, 2007.
- [131] K. Makino and M. Berz, "COSY INFINITY version 9," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol. 558, no. 1, pp. 346–350, 2006.
- [132] K. L. Brown, D. C. Carey, C. Iselin, and F. Rothaker, TRANSPORT A Computer Program for Designing Charged Particle Beam Transport Systems. CERN Report 80-04, Geneva, 1980.
- [133] A. Stolz, "Untersuchung der Ionenoptik des Kölner AMS-Massenspektrometers und Vergleich unterschiedlicher Betriebsmodi für ausgesuchte Radioisotope," Diplomarbeit, Universität zu Köln, 2012.
- [134] H. Wollnik, Optics of Charged Particles. Academic Press, Inc., San Diego, 1987.
- [135] M. Schiffer, "Aufbau eines Injektors für Massenspektrometrie am Kölner FN-Tandembeschleuniger," *Diplomarbeit, Universität zu Köln,* 2012.
- [136] F. Hinterberger, Physik der Teilchenbeschleuniger und Ionenoptik, vol. 2. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2008.
- [137] L. K. Fifield, S. G. Tims, J. O. Stone, D. C. Argento, and M. de Cesare, "Ultrasensitive measurements of <sup>36</sup>Cl and <sup>236</sup>U at the Australian National University," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 294, pp. 126–131, 2013.
- [138] K. M. Wilcken, D. Fink, M. A. C. Hotchkis, D. Garton, D. Button, M. Mann, R. Kitchen, T. Hauser, and A. O'Connor, "Accelerator Mass Spectrometry on SIRIUS: New 6MV spectrometer at ANSTO," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 406, pp. 278–282, 2017.
- [139] W. Hürlimann, "Der Magnetspektrograph "Big Karl" und die Untersuchung des Übergangskernes <sup>103</sup>Ru mit (d,p)- und (p,d)-Reaktionen," Dissertation, Kernforschungsanlage Jülich GmbH, 1981.
- [140] D. Paul, "Untersuchung des Magnetspektrographen BIG KARL auf Bildfehler und ihre Ursachen," *Dissertation, Kernforschungsanlage Jülich GmbH*, 1987.
- [141] D. Prasuhn, R. Maier, U. Bechstedt, J. Dietrich, U. Hacker, S. Martin, H. Stockhorst, R. Tölle, D. Grzonka, C. Nake, and F. Mosel, "First internal and external

experiments at COSY Juelich," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol. 362, no. 1, pp. 16–19, 1995.

- [142] J. Bojowald, A. Budzanowski, A. Chatterjee, J. Ernst, L. Freindl, D. Frekers, P. Hawranek, J. Ilieva, L. Jarczyk, K. Kilian, S. Kistryn, S. Kliczewski, W. Klimala, D. Kolev, M. Kravčiková, T. Kutsarova, J. Lieb, H. Machner, A. Magiera, G. Martinská, L. Pentchev, D. Protič, B. Razen, P. von Rossen, B. J. Roy, R. Siudak, J. Smyrski, A. Strzalkowski, R. Tsenov, M. Uličný, J. Urbán, and A. Wrońska, "Magnetic spectrometer Big Karl for studies of meson production reactions," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol. 487, no. 3, pp. 314–322, 2002.
- [143] S. A. Martin, A. Hardt, J. Meissburger, G. P. A. Berg, U. Hacker, W. Hürlimann, J. G. M. Römer, T. Sagefka, A. Retz, O. W. B. Schult, K. L. Brown, and K. Halbach, "The QQDDQ magnet spectrometer "big karl"," *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 214, no. 2-3, pp. 281–303, 1983.
- [144] H. A. Enge, "MAGNETIC SPECTROGRAPHS FOR NUCLEAR REACTION STUDIES," Nuclear Instruments and Methods, vol. 162, pp. 161–180, 1979.
- [145] C. A. Wiedner, NOVELTIES IN SPECTROMETERS. Proceedings of the 7th International Conference on Cyclotrons and their Applications, Birkhäuser, Basel, 1975.
- [146] L. G. Atencio, G. P. A. Berg, P. von Brentano, B. Brinkmöller, G. Hlawatsch, J. Meissburger, C. F. Moore, C. L. Morris, D. Paul, J. G. M. Römer, M. Rogge, P. von Rossen, T. Sagefka, S. J. Seestrom-Morris, and L. Zemlo, "THE NEW FOCAL PLANE DETECTOR FOR THE MAGNET SPECTROMETER BIG KARL," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol. 242, pp. 95– 102, 1985.
- [147] U. Külz, "Entwicklung einer graphischen Oberfläche zur Steuerung und Kontrolle des großen Magnetspektrometers BIG KARL," Diplomarbeit, Fachhochschule Isny, 1995.
- [148] R. Altenkirch, "Setting the new AMS-Injector at the FN-Tandem Accelerator into Operation and First Performance Test," *Masterarbeit*, Universität zu Köln, 2014.
- [149] A. P. de Haas, J. J. Langerak, C. J. Oskamp, H. de Vries, and K. van der Borg, "PULSED BEAM MEASUREMENT SYSTEM," *Nuclear Instruments and Me*-

*thods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms,* vol. 29, pp. 91–93, 1987.

- [150] M. Suter, R. Balzer, G. Bonani, and W. Wölfli, "A FAST BEAM PULSING SYS-TEM FOR ISOTOPE RATIO MEASUREMENTS," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 5, pp. 242–246, 1984.
- [151] R. Hellborg, Electrostatic Accelerators. Berlin/Heidelberg: Springer-Verlag, 2005.
- [152] K. van der Borg, C. Alderliesten, A. de Jong, A. van den Brink, A. de Haas, H. Kersemaekers, and J. Raaymakers, "Precision and mass fractionation in <sup>14</sup>C analysis with AMS," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 123, pp. 97–101, 1997.
- [153] S. Udovcic, "Bau einer Apparatur zur Bestimmung von Foliendicken mit hilfe der RBS-Methode," *Bachelorarbeit*, *Universität zu Köln*, 2014.
- [154] T. Voss, "Software-Entwicklung zur Ansteuerung eines Emittanzmeßgerätes," Bachelorarbeit, Universität zu Köln, 2016.
- [155] W. K. Stuckey and R. W. Kieser, "Doubly charged Negative Ions of Oxygen, Fluorine, Chlorine and Bromine," *Nature*, vol. 209, pp. 694–696, 1966.
- [156] H. Baumann, E. Heinicke, H. J. Kaiser, and K. Bethge, "ON THE EXISTENCE OF DOUBLY NEGATIVE CHARGED HEAVY IONS," *Nuclear Instruments* and Methods, vol. 95, pp. 389–391, 1971.
- [157] L. Frees, E. Heinicke, and W. S. Koski, "CONCERNING DOUBLY CHARGED NEGATIVE IONS OF IODINE IN THE GAS PHASE," Nuclear Instruments and Methods, vol. 159, pp. 5–7, 1979.
- [158] B. X. Han, J. R. Southon, M. L. Roberts, and K. F. von Reden, "Computer simulation of MC-SNICS for performance improvements," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 261, pp. 588–593, 2007.
- [159] S. Hosoya, K. Sasa, T. Matsunaka, T. Takahashi, M. Matsumura, H. Matsumura, M. Sundquist, M. Stodola, and K. Sueki, "Optimization of  $\Delta E E$  detector for <sup>41</sup>Ca AMS," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 406, pp. 268–271, 2017.
- [160] P. Lechner, S. Eckbauer, R. Hartmann, S. Krisch, D. Hauff, R. Richter, H. Soltau, L. Strüder, C. Fiorini, E. Gatti, A. Longoni, and M. Sampietro, "Silicon drift detectors for high resolution room temperature X-ray spectroscopy,"

Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol. 377, no. 2-3, pp. 346– 351, 1996.

- [161] E. Liarokapis and T. J. M. Zouros, "Target and projectile K x-ray production by 100, 160, and 200 MeV Nb collisions with thick solid targets," *Journal de Physique*, vol. 51, pp. 735–745, 1990.
- [162] K. Nishiizumi, M. W. Caffee, and D. J. DePaolo, "Preparation of <sup>41</sup>Ca AMS standards," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 172, no. 1-4, pp. 399–403, 2000.
- [163] H. Shen, F. Pang, S. Jiang, M. He, K. Dong, L. Dou, Y. Pang, X. Yang, X. Ruan, M. Liu, and C. Xia, "Study on <sup>41</sup>Ca-AMS for diagnosis and assessment of cancer bone metastasis in rats," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 361, pp. 643–648, 2015.
- [164] B.-A. Dittmann, "Herstellung und Charakterisierung von <sup>53</sup>Mn- und <sup>239,24x</sup>Pu- Standards zur Anwendung in der Beschleuniger-Massenspektrometrie," *Dissertation*, *Universität zu Köln*, 2017.
- [165] Z. Dlouhy, A. Crégut, M. Genova, M. T. Cross, D. W. Reisenweaver, M. Laraia, M. T. Cross, Y. Sivintsev, and R. I. Smith, *Radiological Characterization of Shut Down Nuclear Reactors for Decommissioning Purposes*. International Atomic Agency, Vienna, 1998.
- [166] C. Fitoussi, G. M. Raisbeck, K. Knie, G. Korschinek, T. Faestermann, S. Goriely, D. Lunney, M. Poutivtsev, G. Rugel, C. Waelbroeck, and A. Wallner, "Search for supernova-produced <sup>60</sup>Fe in a marine sediment," *Physical Review Letters*, vol. 101, p. 121101, 2008.
- [167] P. Ludwig, "Search for <sup>60</sup>Fe of Supernova Origin in Eath's Microfossil Record," Dissertation, Technische Universität München, 2015.

# Danksagung

Prof. Dr. Alfred Dewald danke ich für seine ansteckende Begeisterung an der Wissenschaft, die ich aufrichtig bewundere. Es war für mich etwas ganz Besonderes, dieses facettenreiche Projekt mit ihm bearbeiten zu dürfen.

Prof. Dr. Jan Jolie danke ich für seine Bereitschaft, diese Arbeit als Prüfer zu bewerten.

Prof. Dr. Hans-Arno Synal danke ich für seine Bereitschaft, diese Arbeit als Prüfer zu bewerten.

Prof. Dr. Tibor Dunai danke ich für den Vorsitz der Prüfungskommission.

Richard Altenkirch danke ich für die schöne gemeinsame Promotionszeit und seine unermüdliche Hilfe bei den Aufbauarbeiten, ohne die es diese AMS-Anlage nicht geben würde.

Claus Feuerstein danke ich für die schöne gesamte Diplom- und Promotionszeit. Durch unsere vielen Gespräche ist die AMS-Anlage geworden, wie sie ist. Ohne seine Programmierung der Steuersoftware wären die Messungen nicht möglich gewesen.

Claus Müller-Gatermann danke ich für seine Hilfe bei der Benutzung der Datenaufnahme und allen Messungen mit Halbleiterdetektoren.

Dr. Stefan Heinze danke ich für die vielen Antworten auf meine Fragen über AMS und Statistik.

Susan Herb danke ich für ihre immerwährende Freundlichkeit, mit der sie unsere Arbeitsgruppe gestärkt und Labview-, Motorsteuerungs- und NMR-Probleme behoben hat.

Alexander Stolz danke ich für die schnelle Implementierung von Funktionen in sein Programm LIMIOPTIC2. Die unmittelbare Umsetzung war eine unverzichtbare Hilfe bei der ionenoptischen Berechnung.

Gereon Hackenberg danke ich für die Unterstützung bei den Messungen mit seinem Gasdetektor und die schnelle Umsetzung des manuellen Bedienpults.

Marcel Marock danke ich für seine durchgehende Hilfsbereitschaft in allen Bereichen und insbesondere wenn es um Computerfragen ging.

Thomas Braunroth danke ich für die schöne gemeinsame Promotionszeit.

Prachanda Bhandari danke ich für den Aufbau der ToF-Detektoren, die immer tadellos funktioniert haben.

Tim Voss danke ich für die Programmierung der Schrittmotorsteuerung.

Frank Bielau danke ich für alle Antworten auf meine Fragen über die SIMATIC.

Viktor Rehl danke ich für seine unermüdliche Arbeit, mit der er unser Experiment stets voran gebracht hat.

Albert Wedel danke ich für die vielen reparierten Netzteile, deren Fehler er mit Hingabe suchte, so dass wir immer schnell wieder in den Messbetrieb gehen konnten.

Stefan Thiel und den Mitarbeitern der Feinmechanik-Werkstatt danke ich für die Präzisionsarbeiten und den schweren Metallbau, ohne den die Experimente nicht hätten stattfinden können.

Björn Dittmann danke ich für die Zurverfügungstellung des Standardmaterials.

Dr. Raimund Tölle vom Forschungszentrum Jülich danke ich für die phantastische Zusammenarbeit beim Abbau von Big-Karl. Durch ihn konnten einige Komponenten des Magnetspektrometers vor der Verschrottung bewahrt werden und in Köln weiterleben.

Dr. Anton Wallner, Dr. Stephen Tims und Dr. Stefan Pavetich danke ich für die gemeinsame Strahlzeit und die Hilfe bei der Suche nach <sup>53</sup>Mn.

### Besonders danke ich meiner Familie.

Meinen Schwiegereltern Steffi und Arno Reimann danke ich dafür, dass sie immer an meinen Erfolg geglaubt haben.

Meinen Eltern Wiltraud und Rolf Schiffer danke ich dafür, dass sie mir Zeit meines Lebens den richtigen Weg gewiesen haben. Ohne Ihre Unterstützung hätte sich mir nie die Gelegenheit geboten, diese wunderbare Arbeit machen zu können.

Besonderer Dank gilt meinem Bruder Christian Schiffer, der mir immer ein Vorbild ist.

Der größte Dank gilt meiner Frau Katrin und meinem Sohn Jonas Leo, die sehr häufig auf unsere gemeinsame Zeit verzichten mussten. Das Schönste war, nach Hause zu kommen und immer Verständnis und Rückhalt zu bekommen.

# Erklärung zur Urheberschaft

"Ich versichere, dass ich die von mir vorgelegte Dissertation selbständig angefertigt, die benutzten Quellen und Hilfsmittel vollständig angegeben und die Stellen der Arbeit - einschließlich Tabellen, Karten und Abbildungen -, die anderen Werken im Wortlaut oder dem Sinn nach entnommen sind, in jedem Einzelfall als Entlehnung kenntlich gemacht habe; dass diese Dissertation noch keiner anderen Fakultät oder Universität zur Prüfung vorgelegen hat; dass sie - abgesehen von unten angegebenen Teilpublikationen - noch nicht veröffentlicht worden ist sowie, dass ich eine solche Veröffentlichung vor Abschluss des Promotionsverfahrens nicht vornehmen werde. Die Bestimmungen der Promotionsordnung sind mir bekannt. Die von mir vorgelegte Dissertation ist von apl. Prof. Dr. Alfred Dewald betreut worden."

#### Teilpublikationen

M. Schiffer, R. Altenkirch, C. Feuerstein, C. Müller-Gatermann, G. Hackenberg, S. Herb, P. Bhandari, S. Heinze, A. Stolz, and A. Dewald "A dedicated AMS setup for medium mass isotopes at the Cologne FN tandem accelerator, "*Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 406, pp. 287-291, 2017

M. Schiffer, A. Dewald, C. Feuerstein, R. Altenkirch, A. Stolz, and S. Heinze, "A dedicated AMS setup for <sup>53</sup>Mn/<sup>60</sup>Fe at the Cologne FN tandem accelerator,"*Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 361, pp. 95-99, 2015

Köln, den 23. März 2018

## Lebenslauf

Markus Hermann Schiffer Elisenstr. 10 51149 Köln

### Persönliche Daten

06.03.1984
Köln-Porz
verheiratet, ein Kind
deutsch

## Ausbildung

Seit 01.08.2012	Promotionsstudium, Experimentalphysik,
	Universität zu Köln
2003–2012	Diplom Physik, Universität zu Köln
2000-2003	Allgemeine Hochschulreife,
	Lessing-Gymnasium, Köln-Zündorf
1994–2000	Fachoberschulreife mit Qualifikation,
	Wilhelm-Busch-Realschule, Köln-Zündorf
1990–1994	Gemeinschaftsgrundschule, Köln-Ensen-Westhoven

### Berufserfahrung

Strahlenschutzbeauftragter S6.4
SAR Expert for CBRN-situations
Wissenschaftlicher Mitarbeiter, Institut für Kernphysik,
Universität zu Köln
Wissenschaftliche Hilfskraft, Institut für Kernphysik,
Universität zu Köln
Studentische Hilfskraft, Institut für Kernphysik,
Universität zu Köln

### Weiterbildungen

06.06.16 - 09.06.16	Strahlenschutzkurs Fachkundegruppe RH & Z3
30.05.16 - 03.06.16	Ausbilder CBRN
21.03.16 - 22.03.16	Gerätewart für Chemikalienschutzanzüge
05.10.15 - 09.10.15	Ausbilder Atemschutz
24.08.15 - 27.08.15	Atemschutz-Gerätewart
19.01.15 - 21.01.15	Strahlenschutzkurs Fachkundegruppe BH
08.12.14 - 11.12.14	Strahlenschutzkurs Fachkundegruppe OH
27.10.14 - 29.10.14	Strahlenschutzkurs Fachkundegruppe GH
10.02.14 - 15.02.14	Führungskräfte Ausland
11.11.13 – 17.11.13	Ausbildung zum ZFü
29.07.13 - 03.08.13	Einsatzgrundlagen Ausland
05.11.12 - 09.11.12	Führungssystem/Fachteil Bergung

Köln, den 23. März 2018

Markus Hermann Schiffer