

DISS. ETH NO. 23958

Optimizing the designs of next-generation AMS systems

A thesis submitted to attain the degree of
DOCTOR OF SCIENCES of ETH ZURICH
(Dr. sc. ETH Zurich)

presented by
Sascha Maxeiner

MSc ETH Physics, ETH Zurich

born on 20.10.1987
citizen of Buchs ZH

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. Hans-Arno Synal, examiner
Prof. Dr. Günther Dissertori, co-examiner
Prof. Dr. Robin Golser, co-examiner

2016

Abstract

Accelerator mass spectrometry (AMS) is a sensitive mass spectrometric technique, capable of measuring isotopic ratios down to the order of 10^{-15} . During the last decade, new molecule and isobar suppression methods, detector improvements and helium stripping have brought many isotopes from large systems (footprints of several 100 m^2) to small (3 MV) and compact ($<1\text{ MV}$) facilities which fit into a small lab, less than 10 m^2 in size. Many applications profit from or are only feasible with cheaper and more accessible AMS, but current facilities are not fully optimized for the new methods and the low energy regime. To improve beam transmission, measurement background and isobar separation at low energies, increased scattering and energy loss straggling of analyzed isotopes in stripper gas, proper containment of the gas, as well as increased beam phase space need to be addressed. Approximations used for optimizing high energy AMS do not properly describe heavy, slow ions and compact differentially pumped vacuum geometries. To close this gap, new simulation tools were developed in this thesis and models adapted to describe ion beam-matter interaction in combination with inhomogeneous gas flow. These models were successfully verified by comparison to beam profiles, scattering losses, energy distributions and gas densities which were observed with different facilities. As a universal tool, they are now applicable also at low energies and with all ion species to investigate and optimize low energy AMS. With charge state yield measurements of carbon in helium between 90 keV and 230 keV, they suggest an optimal stripping energy of 100 keV for efficient radiocarbon AMS, where blanks older than $(47'000 \pm 650)$ years BP were observed with a simple test setup. An existing 0.5 MV multi isotope AMS system was equipped with a smaller 300 kV tandem accelerator, optimized for He stripping. This prototype setup showed comparable efficiency for some nuclides (^{10}Be , ^{26}Al , ^{129}I) and an improvement in abundance sensitivity of an order of magnitude for actinides. ^{41}Ca was measured with 30 % lower transmission due to reduced phase space compression and charge state dependent acceleration focusing. Following this proof-of-principle experiment, a design for a state of the art low energy multi isotope AMS was proposed which is capable of transporting charge states up to 5^+ equally with additional quadrupole lenses. It comprises the new 300 kV tandem accelerator, an achromatic injection spectrometer with mass resolving power for actinides and a double achromatic post-acceleration (HE) spectrometer with full acceptance for all isotopes and charge states on less than 30 m^2 of floor space. Transmission through stripping and HE side was estimated from simulations to be at least 35 % (actinides, ^{26}Al) up to 50 % (^{14}C , ^{41}Ca and ^{129}I) and 10 % for ^{10}Be . It is expected to serve both as a new routine multi isotope measurement facility as well as research platform to advance the field of low energy AMS.

Zusammenfassung

Beschleuniger-Massenspektrometrie (AMS) ist eine sensitive massenspektrometrische Methode, welche Isotopenverhältnisse bis hinunter zu Grössenordnungen von 10^{-15} bestimmen kann. Neue Methoden zur Molekül- und Isobarenunterdrückung, Verbesserungen der Detektion, sowie Strippen mit Helium haben es im letzten Jahrzehnt ermöglicht, Isotope auf kleinen (3 MV) und kompakten (<1 MV) Systemen zu messen, auf weniger als 10 m^2 Grundfläche, welche in der Vergangenheit nur mit grossen Systemen (auf mehreren 100 m^2) analysiert werden konnten. Viele Anwendungen profitieren von, oder sind gar nur praktikabel mit günstigerer und einfach zugänglicherer AMS. Aktuelle Systeme sind jedoch noch nicht vollständig optimiert für die neuen Methoden und den tiefen Energiebereich. Um Strahltransmission, Messuntergrund und Isobarentrennung bei tiefen Energien zu optimieren, müssen sowohl erhöhte Streuung und Energiestraggling von analysierten Teilchen in Strippergas, ausreichender Einschluss des Gases, als auch vergrössertes Phasenraumvolumen des Ionenstrahls berücksichtigt werden. Approximationen, welche für die Optimierung von hochenergie-AMS genutzt werden, beschreiben schwere, langsame Ionen und kompakte, differentiell gepumpte Vakuumgeometrien nicht ausreichend gut. Um diese Lücke zu schliessen, wurden im Rahmen dieser Arbeit neue Simulationswerkzeuge entwickelt und Modelle adaptiert, um die Interaktion von Ionenstrahlen mit Materie in Verbindung mit inhomogenen Gasfluss zu beschreiben. Diese Modelle konnten erfolgreich verifiziert werden durch Vergleiche mit Strahlprofilen, Streuverlusten, Energieverteilungen und Gasdichten, welche mit verschiedenen Anlagen gemessen wurden. Als universelles Werkzeug sind diese Modelle nun auch anwendbar bei tiefen Energien und mit allen Arten von Ionen, um niederenergie-AMS zu erforschen und zu optimieren. Durch Messung von Ladungsverteilungen von Kohlenstoff in Helium zwischen 90 keV und 230 keV konnte für effiziente Radiokohlenstoff AMS eine optimale Stripping-Energie von 100 keV vorhergesagt werden, bei welcher Blanks älter als $(47'000 \pm 650)$ BP mit einem simplen Testaufbau gemessen werden konnten. Ein bestehendes 0.5 MV multi-Isotopen AMS System wurde mit einem 300 kV Tandem Beschleuniger ausgestattet, welcher für He Stripping optimiert wurde. Dieses Prototyp Experiment wies vergleichbare Effizienz für bestimmte Nuklide auf (^{10}Be , ^{26}Al , ^{129}I) und eine Verbesserung der Nachbarmassentrennung von einer Grössenordnung für Aktiniden. ^{41}Ca wurde mit 30 % weniger Transmission gemessen aufgrund von reduzierter Phasenraumkompression und Ladungszustands-abhängiger Beschleunigerfokussierung. Anschliessend an diese Machbarkeitsstudie wurde ein Konzept für ein State-of-the-Art, niederenergetisches multi-Isotopen AMS vorgeschlagen, welches mit zusätzlichen Quadrupollinsen Ladungszustände bis zu 5^+ auf gleiche Art und Weise transportieren kann. Dieses besteht aus dem neuartigen 300 kV Tandembeschleuniger, einem achromatischen Injektionsspektrometer mit Massen-Auflösungsvermögen für Aktiniden und einem

doppelt achromatischen (HE-)Spektrometer nach der Tandembeschleunigung mit voller Akzeptanz für alle Isotope und Ladungszustände auf weniger als 30 m² Grundfläche. Die Transmission durch Stripper und HE-Seite wurde durch Simulationen abgeschätzt auf mindestens 35 % (Aktiniden, ²⁶Al) bis zu 50 % (¹⁴C, ⁴¹Ca und ¹²⁹I) und 10 % für ¹⁰Be. Das System wird voraussichtlich sowohl für multi-Isotopen Routinemessungen als auch als Forschungsplattform genutzt werden, um das Fachgebiet der niederenergie-AMS weiterzuentwickeln.
