

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium
für Bildung
und Forschung

Schlussbericht

Verbund: nein

Zuwendungsempfänger: Karlsruher Institut für Technologie (KIT)
Projektleitung: Prof. Dr. Helmut Ehrenberg
E-Mail: helmut.ehrenberg@kit.edu
Förderkennzeichen: 05K16VK3
Förderzeitraum: 01.07.2016 - 31.03.2020
Zuwendung: 875.448,93 €
Projektträger: Projektträger DESY

Zusätzlicher Kontakt: michael.knapp@kit.edu
Zusätzlicher Name: Michael Knapp

Genutzte Großgeräte:	Labor	Gerät	Experiment
	TUM	FRM II	
Diplomarbeiten:			
Dissertationen:			
Habilitationen:			
Referierte Publikationen:	4		
Andere Veröffentlichungen:			
Patente:			
Bachelorarbeiten:			
Masterarbeiten:			
Staatsexamen:			

Dieser Bericht wurde beim Projektträger über einen individuellen Online-Zugang vom Projektleiter eingereicht und am 15.10.2020 15:56 für eine Veröffentlichung freigegeben.

Schlussbericht

Zuwendungsempfänger: Karlsruher Institut für Technologie (KIT)

Projektleitung: Prof. Helmut Ehrenberg

Verbund:

Thema: Thermische Neutronen am Messplatz NECTAR

Zusammenfassung

An der Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz in Garching bei München betreibt die TU München am Strahlrohr 10 zwei Bestrahlungspositionen, an denen ein Spaltneutronenspektrum zur Verfügung steht: MedApp für medizinische Bestrahlungen und NECTAR für zwei- und dreidimensionale bildgebende Untersuchungen an technischen Proben mittels Neutronenradiographie und –tomographie. Die vom zentralen Brennelement freigesetzten Neutronen werden im Schwerwassertank thermalisiert, bevor sie die Strahlrohrnase erreichen. Hier sind im Standardbetrieb Konverterplatten positioniert, die durch den Einfang thermischer Neutronen und die nachfolgende Kernspaltung als sekundäre Quelle für schnelle Spaltneutronen dienen. Das beantragte Projekt hat den Messplatz NECTAR um ein zusätzliches thermisches Neutronenspektrum für tomographische Untersuchungen und andere Bestrahlungsexperimente erweitert. Hierfür wurde die Primäroptik modifiziert und automatisiert, eine Reihe unterschiedlicher Detektoren etabliert, die durch Auswahl von Auflösung und Sichtfeld dem Messproblem angepasst werden können. Dabei konnte eine sehr gute Ortsauflösung sowohl für schnelle (100 μ m) als auch thermische Neutronen (50 μ m) erreicht werden. Ergänzt wurde der Umbau durch einen neuen Objektisch für schwere Lasten, mit dem die untersuchten Objekte nah vor dem Detektor platziert werden können. Dies reduziert den Parallaxenfehler und verbessert die Auflösung. Durch die Umbauten innerhalb dieses Projekts ergibt sich nun weltweit einmalig die Möglichkeit, kombinierte tomographische Untersuchungen an einer Probe sowohl mit hochenergetischen als auch mit thermischen Neutronen durchzuführen und zusammen mit den kalten Neutronen am Messplatz ANTARES das Spektrum zu vervollständigen.

Bericht

1 Aufgabenstellung und Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde

An der Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz in Garching bei München betreibt die TU München am Strahlrohr 10 zwei Bestrahlungspositionen, an denen ein Spaltneutronenspektrum zur Verfügung steht. Es sind dies die Anlage MedApp für die medizinische Bestrahlung von Patienten und die Anlage NECTAR für zwei- und dreidimensionale bildgebende Untersuchungen an technischen Proben mittels Neutronradiographie und –tomographie.

Die vom zentralen Brennelement freigesetzten Neutronen werden im Schwerwassertank thermalisiert, bevor sie die Strahlrohrnase erreichen. Hier sind im Standardbetrieb Konverterplatten positioniert, die hochangereichertes Uran enthalten. Durch den Einfang der thermischen Neutronen und die nachfolgende Kernspaltung wirken diese Konverterplatten als sekundäre Quelle für schnelle Spaltneutronen. Diese stehen nach dem Passieren der Instrumentshutter und der Filterbank an den beiden Messpositionen zur Verfügung.

Das beantragte Projekt besteht aus zwei eng miteinander verbundenen Teilen: 1. Die geplante Option zur Erweiterung des Messplatzes NECTAR, um zusätzlich ein thermisches Neutronenspektrum für tomographische Untersuchungen und andere Bestrahlungsexperimente (z.B. für medizinisch pharmazeutische Vorhaben wie „NanoMediPharm“) zur Verfügung zu stellen. Hierdurch ergibt sich weltweit einmalig die Möglichkeit, kombinierte tomographische Untersuchungen an einer Probe sowohl mit hochenergetischen als auch mit thermischen Neutronen durchzuführen und zusammen mit den kalten Neutronen an ANTARES das Spektrum zu vervollständigen. 2. Die Weiterentwicklung und Anwendung der Methodik, um die mit thermischen und schnellen Neutronen gewonnenen Daten in einem kombinierten Auswerteverfahren nutzen zu können. Im Rahmen dieses Projektantrags stehen dabei in situ Untersuchungen von Lithiumionenzellen und Batteriesystemen im Vordergrund. Die neu geschaffenen Messmöglichkeiten dienen zur Aufklärung von Ermüdungsmechanismen und tragen zur Entwicklung verbesserter Energiespeichersysteme bei. Die Erweiterung des am SR10 zur Verfügung stehenden Neutronenenergiebereichs hin zu thermischen Neutronen ist jedoch auch für andere Arbeitsgruppen von Interesse, da die thermische Option kombinierte Experimente an NECTAR ermöglicht, die anderenfalls an zwei separaten Instrumenten durchgeführt werden müssten. Die geplante thermische Option erfüllt dabei alle Anforderungen, die aktuell für solche Anlagen als „state-of-the-art“ betrachtet werden.

Ein Einbinden der thermischen Option in den Betrieb der bereits existierenden Anlage mit schnellen Neutronen führt nicht nur zu einer weltweit einzigartigen Kombination der beiden Energiespektren, sondern es werden auch viele, der mitunter kostenintensiven Punkte bei der Installation einer entsprechenden Anlage durch die bereits vorhandene Infrastruktur abgedeckt

2 Wissenschaftlicher und technischer Stand, an den angeknüpft wurde

Am Messplatz NECTAR am Heinz Maier-Leibnitz Zentrum (MLZ) soll zusätzlich zur Nutzung von schnellen Spaltneutronen ein thermisches Neutronenspektrum für die bildgebenden Verfahren der Neutronenradiographie und Neutronentomographie und als zusätzliches Energiespektrum bei Bestrahlungstests zur Verfügung gestellt werden. Das am Instrument eingesetzte Konverterplattenprinzip zur Generierung von Spaltneutronen ermöglicht die weltweit einzigartige Möglichkeit zur kombinierten Nutzung von thermischen und schnellen Neutronen, ohne die Notwendigkeit den Strahlplatz zu wechseln. Die Modifikationen sind minimalinvasiv möglich und beschränken sich auf die Automatisierung einer bislang permanent eingebauten Abschirmung, die den thermischen Spektralbereich fast vollständig unterdrückt, und den Aufbau eines mobilen Strahlrohrs, um Transmissionsverluste für den thermischen Neutronenstrahl zu minimieren. Ergänzend zu diesen Maßnahmen soll das vorhandene Detektorsystem optimiert und für die Nutzung mit thermischen Neutronen ertüchtigt werden. Dazu muss

dieses mit einem für thermische Neutronen sensitiven Szintillator ausgerüstet werden. Der vorhandene CCD-Detektor des vorhandenen Systems soll durch einen hochauflösenden ersetzt werden, um der durch die Nutzung von thermischen Neutronen verbesserten intrinsischen Ortsauflösung gerecht zu werden. Ferner soll im Rahmen des Projekts ein zweites Detektorsystem aufgebaut werden, das im Gegensatz zum vorhandenen System Messungen mit Sichtfeldern von weniger als 15 cm x 15 cm erlaubt, womit kleinere Proben oder Teilbereiche großer Proben mit höherer Genauigkeit gescannt werden können. Im Vordergrund steht hierbei die Nutzung mit thermischen Neutronen, wobei auch die Verwendung mit Spaltneutronen möglich ist, sofern ein entsprechender Szintillator eingesetzt wird. Das hochauflösende Detektorsystem soll mit einem entsprechenden Probentisch kombiniert werden, welcher durch seine geringen Abmessungen erlaubt, die Proben möglichst nahe vor dem Detektor zu positionieren, wodurch die geometrische Unschärfe aufgrund der Strahldivergenz minimiert werden kann. Parallel soll eine Neukonstruktion des Kollimators, der dann für schnelle und thermische Neutronen genutzt wird, ebenfalls dazu dienen, die erreichbare Ortsauflösung zu erhöhen. Zur Charakterisierung soll im Anschluss der hochauflösende Detektor eingesetzt werden.

Durch neutronentomographische Untersuchungen an Lithiumionenbatterien sollen wesentliche Informationen über die in einer solchen Batterie ablaufenden Prozesse erhalten werden, die nur unter realen Betriebsbedingungen zugänglich sind. Im Vordergrund steht dabei die Bestimmung der Elektrolytverteilung in Abhängigkeit von Ladezustand, Ermüdungsgrad und unterschiedlichen Zell designs. Da sich die Volumina der Aktivmaterialien auf Anoden- und Kathodenseite in Abhängigkeit des Ladezustands stark ändern, wird der Elektrolyt im ständigen Wechsel von den Aktivmaterialien aufgesogen bzw. aus ihnen herausgepresst. Die hieraus resultierende Elektrolytdynamik verändert sich im Laufe der Zellebensdauer, da sich zum einen Teile des Elektrolyten durch Nebenreaktionen verbrauchen, zum anderen verändert sich die Porosität des Elektrodenkomposits. Diese Auswirkungen sind mitentscheidend für die Lebensdauer derartiger Energiespeicher, da es teilweise auch zum Austrocknen und damit zu einer Deaktivierung von ganzen Bereichen kommen kann. Die verschiedenen Zell designs, z.B. aufgewickelte Rundzellen im Vergleich zu prismatischen Stapelzellen, zeigen hier sehr unterschiedliche Effekte und erfordern deshalb auch verschiedene Mengen an Elektrolytüberschuss. Bisher werden solche Optimierungen von Zellherstellern empirisch durchgeführt, da geeignete in situ Messmethoden noch fehlen. Hier setzt das vorgeschlagene wissenschaftliche Programm an: Die neu entwickelten Optionen werden zur Aufklärung der relevanten Ermüdungsmechanismen eingesetzt. Neben der Elektrolytdynamik ist die Lithiumplattierung, d.h. das Abscheiden von metallischem Lithium auf der negativen Elektrode (meist Graphit), als relevanter Ermüdungsmechanismus und aufgrund der Gefahr eines Kurzschlusses durch Lithiumdendritenbildung als Sicherheitsrisiko bekannt. Die Neutronentomographie bietet einen idealen Ansatzpunkt für eine zerstörungsfreie Methode, um die Entstehung von Lithiumkeimen und eine fortschreitende Lithiumabscheidung zu verfolgen. Hier ist eine entsprechende Weiterentwicklung (höhere Ortsauflösung!) der Messmöglichkeiten zu verwirklichen und für die Lebensdaueranalyse von Lithium-basierten Energiespeichern einzusetzen. Dabei wird die relativ starke Neutronenabsorption von Lithium ausgenutzt. Sie wird durch das zu 7.5% natürlich vorkommende ${}^6\text{Li}$ Isotop verursacht. Auch der Wasserstoffkontrast wird bei dieser Methode ausgenutzt und ermöglicht einen direkten Zugang zur Untersuchung der Elektrolytdynamik in Lithiumionenbatterien, da der eingesetzte wasserfreie Elektrolyt organische Lösungsmittel mit hohem Wasserstoffanteil besitzt. Prinzipiell eignet sich diese Methode natürlich auch zur Bestimmung von Wasserstoffverteilungen in anderen Systemen. So sollen mit dem erweiterten Messplatz auch neuartige Untersuchungsmöglichkeiten für Wasserstoffspeicher erschlossen werden. Nicht zuletzt bietet die Kombination eines thermischen Neutronenspektrums mit dem schnellen Spaltspektrum eine ideale Erweiterung für Bestrahlungsversuche an elektronischen Bauteilen (z.B. Satellitentechnik) aber auch für medizinische Untersuchungen z.B. im Rahmen der Krebstherapie.

Aktuell werden die Messplätze MedApp und NECTAR ausschließlich mit schnellen Neutronen versorgt, welche aus Spaltreaktionen von hochangereichertem Uran innerhalb der sogenannten Konverterplatten stammen. Diese Konverterplatten können ferngesteuert ein- und ausgefahren werden und

sind in der Arbeitsposition vor dem Eintrittsfenster des Strahlrohrs positioniert. Thermische Neutronen aus dem Moderator tank lösen in diesem Fall Spaltreaktionen in den Konverterplatten aus. Die dabei frei werdenden schnellen Spaltneutronen treten ins Strahlrohr ein und werden ohne Moderation zu den Messplätzen weiter geleitet. Sind die Konverterplatten hingegen ausgefahren, tritt ein moderiertes, rein thermisches Neutronenspektrum in das Strahlrohr ein, welches bei geöffnetem Shutter und nach Entfernen einer bislang fest eingebauten Abschirmung die Nutzung des thermischen Strahls am Messplatz ermöglicht. Bisher waren hierfür zeitaufwendige Umbauarbeiten (ca. 6 Stunden) nötig. Diese Arbeiten müssen teilweise unter erhöhter Strahlenbelastung ausgeführt werden (Entfernen der Abschirmung für thermische Neutronen) und sind deshalb äußerst problematisch und durch die vorgesehenen und relativ einfachen technischen Maßnahmen unbedingt zu vermeiden. Mit dem für erste Testmessungen verwendeten Aufbau stand ein Neutronenstrahl mit einem Nutzdurchmesser von 85 mm zur Verfügung. Durch den geplanten Umbau soll das nutzbare Strahlungsfeld auf bis zu 300 mm x 300 mm vergrößert werden. Dies entspricht dem Strahlquerschnitt, der auch mit schnellen Neutronen genutzt werden kann.

Vor Projektbeginn wurde das Spaltneutronenspektrum der Anlage für Materialuntersuchungen am Messplatz NECTAR und zur Bestrahlung von Tumorpatienten am Messplatz MedApp genutzt. Die Patientenbestrahlungen fanden ausschließlich tagsüber statt und beschränkte sich auf maximal zwei Tage pro Woche. Folglich kann der Messplatz NECTAR abends, nachts, am Wochenende und den verbleibenden Werktagen genutzt werden. Im Gegensatz zu den Messungen mit Spaltneutronen, die aufgrund der sehr geringen Nachweiswahrscheinlichkeit oft Messzeiten von mehreren Tagen benötigen, erreicht man bei den Messungen mit thermischen Neutronen bereits innerhalb einiger Stunden Ergebnisse mit ausreichender Neutronenstatistik. Hierdurch bietet sich die Möglichkeit, für die thermischen Messungen auch die kürzeren Pausen zwischen den Patientenbestrahlungen zu nutzen. Das vorgesehene Projekt beeinträchtigt in keiner Weise die medizinischen Anwendungen und steht in keiner Konkurrenz hierzu

Neben der Möglichkeit die Abschirmung für thermische Neutronen ferngesteuert ein- und auszufahren, soll ein neuer Kollimator für den kombinierten thermischen und schnellen Betrieb realisiert werden. Sein Einbau soll unabhängig vom Aufbau für die medizinische Bestrahlung erfolgen. Geplant ist ein aus mehreren Modulen bestehender Kollimator, der möglichst reaktornah eingebaut wird. Durch einen verkürzten Abstand zur Neutronenquellfläche ergibt sich eine Optimierung für den zu erwartenden „vollausgeleuchteten“ Bereich an der Messposition. Zu jedem Punkt innerhalb dieses Strahlungsbereichs trägt ein gleichgroßer Teil der Quellfläche bei. Somit ist innerhalb des entsprechenden Strahlquerschnitts mit einem konstanten Neutronenfluss zu rechnen. Bei gleichem L/D-Verhältnis (gleicher Kollimation) ist der zu erwartende Neutronenfluss innerhalb des vollausgeleuchteten Bereichs unabhängig von der Blendenposition, da sich die von der Detektorebene aus sichtbare Quellfläche hierdurch nicht ändert. Jedoch ändert sich in der Detektorebene die Größe des vollausgeleuchteten Bereichs, innerhalb dessen der konstante Neutronenfluss nutzbar ist.

Für den Betrieb mit thermischen Neutronen ist vorgesehen, in der Messkammer von MedApp ein temporäres Flugrohr zu installieren. Hierfür gibt es zwei Gründe: zum einen wäre bei einem Betrieb ohne Flugrohr und einer Wegstrecke von vier Metern mit Transmissionsverlusten von etwa 25% zu rechnen, zum anderen kann durch ein Auskleiden des Flugrohrs mit einem borhaltigen Neutronenabsorber verhindert werden, dass die thermischen Neutronen aus dem Flugrohr austreten. Somit besteht kein Risiko einer Aktivierung von Aufbauten im Bereich des MedApp-Messplatzes. Für Messungen mit schnellen Neutronen bietet das Flugrohr einen weiteren Vorteil, da durch seine Verwendung ein Aufstreuen der Neutronen im MedApp-Raum reduziert wird und somit der Ausbildung eines „thermischen Sees“ innerhalb der Messkammern entgegengewirkt wird. Da das Flugrohr während der Patientenbestrahlungen abgebaut werden muss, soll es konstruktiv so ausgelegt werden, dass es in weniger als einer halben Stunde eingebaut bzw. ausgebaut werden kann.

Gegenüber anderen Instrumenten besitzt die Strahlrohrnase am SR10 einen vergleichsweise großen Abstand vom zentralen Brennelement. Es ist daher mit einem sehr gut moderierten thermischen Strahl zu rechnen. Eine erste Simulationsrechnung hat gezeigt, dass der Anteil an epithermischen und schnellen Neutronen etwa vier Größenordnungen geringer ist als der Anteil an thermischen Neutronen.

Generelles Ziel ist es, möglichst keine Veränderungen an bereits vorhandenen Komponenten vorzunehmen, sondern die für den thermischen Betrieb notwendigen Einbauten in bisher ungenutzten Freiräumen zu positionieren oder mit geplanten Umbauten für den technischen Betrieb mit schnellen Neutronen (an der Anlage NECTAR) zu kombinieren. Alle Einbauten werden so geplant, dass sie bei Nichtverwendung komplett aus dem Strahlengang ausgefahren werden können. Hierdurch ist ein unveränderter Betrieb der Anlage MedApp für die Patientenbestrahlung gewährleistet. Nach den geplanten Modifikationen muss für den Wechsel zwischen Patientenbestrahlung und dem kombinierten Betrieb der Anlage mit thermischen und schnellen Neutronen nur das geplante Flugrohr in der Patientenbestrahlungskammer aufgebaut werden. Für den beantragten zweiten Detektor soll auf ein Konzept zurückgegriffen werden, das sich an den Neutronenradiographieanlagen weltweit etabliert hat. Es beruht auf einem neutronensensitiven Szintillationsschirm, der mit Hilfe einer Optik auf einen zweidimensionalen digitalen Bildsensor abgebildet wird. Durch stete Weiterentwicklung dieser Detektorbauart werden neben der Nachweiswahrscheinlichkeit vor allem auch die erreichten Ortsauflösungen immer besser. Der geplante Detektor soll bei einem Sichtfeld von 100 mm x 100 mm eine Ortsauflösung von 100 µm ermöglichen. Für Radiographieanwendungen mit thermischen Neutronen entspricht dies einer Standardauflösung, für Radiographie mit schnellen Neutronen hingegen ist es ein hoch gestecktes Ziel und bedarf einer Weiterentwicklung der Szintillatoren.

3 Planung und Ablauf des Vorhabens sowie Kooperation mit Dritten

Für das Projekt wurde ein promovierter Wissenschaftler eingestellt, der nach ca. 1 Jahr das Projekt verließ. Nach einer kurzen kommissarischen Weiterführung wurde konnte eine weitere Wissenschaftlerin eingestellt werden, die das Projekt bearbeitet. Der zweifache Personalwechsel innerhalb des Projekts führte zu Verzögerungen. Hauptaufgabe war die Fertigstellung des Umbaus und Durchführung von Pilotversuchen, sowie die weitere Integration der Instrumentensetups in den MLZ-Experimentierpool. Der Postdoc wurde in die Struktur am MLZ eingeordnet.

Die Einbindung der Hardware und die entsprechende Adaption der Software erfolgte in Kooperation mit den Wissenschaftlern und Infrastrukturgruppen am MLZ.

Die antragstellende Gruppe IAM-ESS des Karlsruher Instituts für Technologie (KIT) hat die wissenschaftliche Unterstützung sowie Aufsichts-, Verwaltungs- und Finanzmanagement sowie Werkstattfähigkeiten für den Bau von nicht kommerziell erhältlichen Bauteilen bereitgestellt.

4 Verwendung der Zuwendung (wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises, z. B. Investitionen, Personalmittel)

Die zur Verfügung gestellten Mittel wurden vollständig zur Umsetzung des Vorhabens verwandt. Neben den Personalmitteln für die involvierten Wissenschaftler waren dies insbesondere folgende Investitionen:

- Umrüstung und Neuanschaffung von Detektoren (CCD Kameras) inklusive Optiken und Szintillatoren und Strahlenschutzumhausung
- Erweiterung und Automatisierung der Strahlführung: Kollimatoren, Flugrohr, Blendensystem, Strahlbegrenzer, Filterbox
- Konstruktion und Bau eines neuen Schwerlast-Objekttisches mit XZ- und Rotationseinheit

5 **Erzielte Ergebnisse mit Gegenüberstellung der vereinbarten Ziele**

Art der Arbeit	1. Jahr	2. Jahr	3. Jahr
Erweiterung der Filterbank (Blenden für thermischen Strahl)	■		
Planung und Realisierung eines Flugrohrs zum Einbau in der Patientenbestrahlungskammer	■		
Umrüsten des vorhandenen Detektors	■		
Charakterisierung des thermischen Strahls	■		
Testbetrieb in der ersten Umbaustufe	■		
Messungen zur Auslegung des modularen Kollimators	■		
Konstruktion, Fertigung und Einbau eines modularen Kollimatorsystems (L/D 150 bis L/D 600)	■	■	
Bau und Inbetriebnahme des zweiten Detektorsystems	■	■	
Charakterisierung des modularen Kollimators	■	■	
Testbetrieb in der zweiten Umbaustufe	■	■	
„Commissioning“ Aufnahme des Routinebetriebs, Eingliederung in das Proposalsystem	■	■	
Arbeiten zur Optimierung der Effizienz der Detektoren für schnelle Neutronen			■
Erarbeiten eines standardisierten Auswertekonzepts für die Kombination von thermischen und schnellen Daten			■
Charakterisierung des Elektrolytverhaltens in Li-Ionenbatterien (LIB) durch <i>in situ</i> Untersuchungen			■
<i>in operando</i> Untersuchungen zur Li-Abscheidung, fortschreitender Schädigung und mechanischer Deformation			■
Komplementäre elektrochemische Charakterisierung und <i>post mortem</i> Analysen von ermüdeten LIB	■	■	■
Bearbeiten der Messzeitanträge aus dem Proposalsystem			■
Simulationsrechnungen zum Untergrundverhalten an den Messplätzen MedApp und NECTAR			■
Vergleich der Simulationen mit Messwerten, ggf. Fertigung und Aufbau zusätzlicher Abschirmwände			■
Publikation der Messplatzcharakteristika, Berichte			■

Alle Ziele Bezüglich des Umbaus des Messplatzes NECTAR wurden erreicht. Testmessungen und Messungen zum Commissioning wurden durchgeführt. Wegen der sehr stark eingeschränkten Strahlzeiten des Reaktors konnte das wissenschaftliche Programm nur eingeschränkt bearbeitet werden. Der Aufbau steht der Nutzerschaft für die nächste Strahlzeit zur Verfügung.

Das Flugrohr für thermische Neutronen wurde im Januar 2019 geliefert und ein zusätzlicher „Fast Shutter“ vor Ort montiert. Der Fast Shutter besteht aus boriiertem Material und kann schnell in den Strahl gefahren werden um eine Aktivierung der Proben in Messpausen zu verhindern. Im 30 Tage Zyklus im Februar und März 2019 wurde das Flugrohr erstmals mit Helium befüllt und getestet. Für die dauerhafte Verwendung wurde das Flugrohr dann im August 2019 mit einem fixen Gasanschluss samt Druckregler und Sicherheitsventil von der Firma KAM (Kraftanlagen München) komplettiert.

Der Kollimator für thermische Neutronen wurde ebenfalls erstmals in Februar 2019 eingesetzt und getestet. Die Kollimation funktioniert für thermische Neutronen sehr gut. Im Zuge dessen wurden

ebenfalls Tests mit schnellen Neutronen durchgeführt, mit dem Ergebnis, dass auch hier die Kollimation sehr gut arbeitet.

Das neue Detektorsystem konnte erstmals im April 2019 am Produktionsort (KIT) besichtigt werden. Aufgrund notwendiger Nacharbeiten konnte die Auslieferung erst Ende Mai 2019 erfolgen. Der anschließende Einbau in das Instrument NECTAR erfolgte dann bis Juli 2019. Zudem wurde ein weiterer Encoder nachgerüstet. Ab Juli 2019 wurde mit den Programmierarbeiten zur Integration des Kollimators, des Strahlbegrenzers sowie des Detektorsystems in die Instrumentensteuerung begonnen. Diese Arbeiten wurden im Dezember 2019 abgeschlossen. Somit können nunmehr alle neu installierten Komponenten über die zentrale Steuersoftware NICOS (auf Python basierend) verbunden und mit den zwei neuen Phytron Motorsteuereinheiten per Computer angesteuert werden.

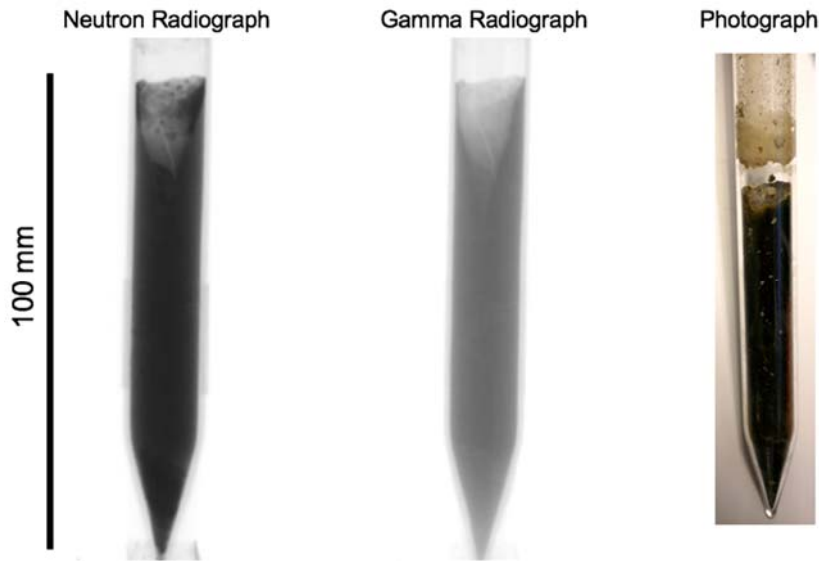
Mit dem alten Detektor-Setup konnte lediglich ein festes Sichtfeld von 350x350mm² realisiert werden. Mit dem neuen Detektor stehen nun drei austauschbare Boxen für Sichtfelder mit 300x300mm², 190x190mm², sowie 100x100mm² zur Verfügung. Jeweils mit der Möglichkeit drei unterschiedliche Kameras (Anodor IKON M, IKON L und NEO) zu verwenden. Das neue System ermöglicht nun eine Auflösung von 50µm und besser für thermische Neutronen. Jede Kamera verfügt über eine Fokussiereinheit für die zum Einsatz kommenden Objektive. Das Verfahren der Kameras erfolgt über die Lineareinheit. Die Einstellung des Sichtfelds inklusive Scharfstellung erfolgt somit automatisiert. Die Umrüstzeiten für die zur Auswahl stehenden Kameras beträgt lediglich 30 Minuten. Der zur Verfügung stehende Arbeitsbereich ermöglicht zudem auch den Einsatz / Aufbau von weiteren Kamera Setups.

Die Automatisierung von Kollimator, Beamlimiter, Flugrohr mit Fast Shutter sowie Detektorsystem ist Userfreundlich abgeschlossen.

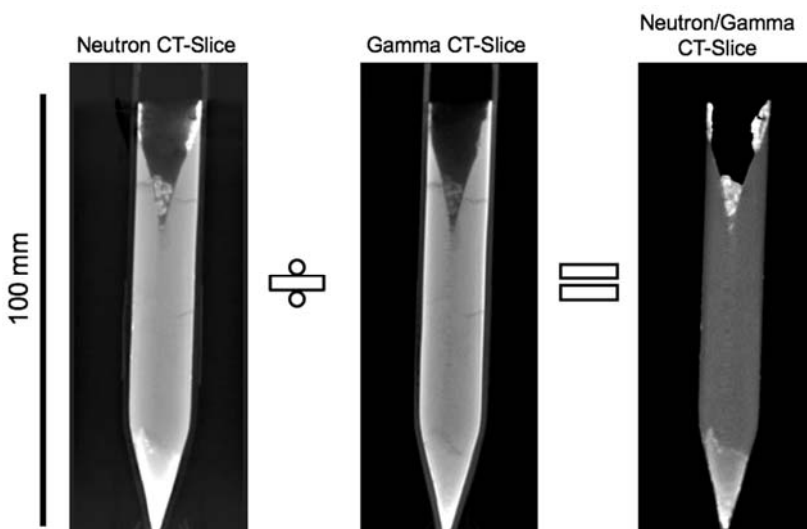
Die digitale Konstruktion des neuen Objektisches wurde 2019 begonnen und bedurfte im Dezember 2019 lediglich eines letzten konstruktiven Feinschliffes samt Endabstimmung im Januar 2020. Mit der Fertigung wurde im Anschluss begonnen.

Aufgrund der Verzögerung in der Brennstofflieferung am FRM II konnten die ersten Messungen des neuen Systems erst im Frühjahr 2020 stattfinden. Die ersten Experimente zeigen vielversprechende Resultate und Veröffentlichungen im Bereich der Weiterentwicklung des Instrumentes, sowie der mehreren User-Experimente, sind derzeit in Arbeit und werden im Laufe des Jahres erwartet.

Ein Beispiel ist die Weiterentwicklung von NECTAR in der bimodalen Radiografie, ermöglicht durch den Einsatz der Upgrades dieses Projektes. Grafik 1 zeigt aufgezeichnete Radiografen unter Nutzung der neuen Systeme. Durch das Automatisieren der Anlage, im Speziellen die Einbindung des Fast Shutters, entsteht nun durch das System die Möglichkeit verschiedene Filter, in diesem Beispiel ein Cadmium-Filter, innerhalb von kurzer Zeit (< 1s) in den Strahl zu fahren, um thermische Neutronen abzuschirmen. Gammastrahlung, welche ebenfalls am Instrument NECTAR durch das Flugrohr kommt, kann so genutzt werden und es kann bimodal mit Neutronen und Gammastrahlung gemessen werden. Grafik 2 zeigt CT-Slices aus der Neutronen-CT und Gamma-CT, sowohl die Division beider Datensätze. Das resultierende Bild in Grafik 3 rechts zeigt eine qualitative orts aufgelöste Änderung der Chemie in der Probe. Die ersten Messungen weisen auf eine Auflösung dieser Methode im Bereich von ~100µm hin. Dies wurde berechnet über ein Sichtfeld von 190x190mm², erstreckt über 2048x2048 Pixels und gemessen mit einem L/D von 200. Es ist festzuhalten, dass durch ein höheres L/D und ein kleineres Sichtfeld höhere Auflösungen erreicht werden können. Die Einbindung des Konzeptes der bimodalen Neutronen- und Gamma- Radiografie ist weltweit einmalig und eröffnet elementare Sensitivität für routinemäßige Messungen am Instrument NECTAR. Ein Manuskript mit Titel: „Gamma in addition to Neutron Tomography (GiaNT) at the NECTAR instrument“, basierend auf den ersten Messungen wird derzeit von A. Losko und M. Schulz verfasst.

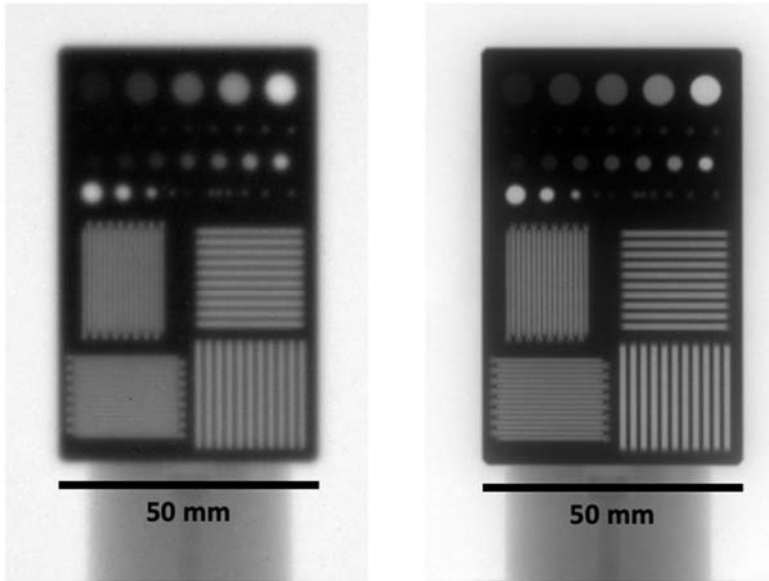


Grafik 1: Radiografien eines Szintillatorkristalls. Links, Neutronenradiografie. Mittig, Gammaradiografie. Rechts, Photographie der Probe.



Grafik 2: Kombinierte Neutronen-/Gamma- CT-Rekonstruktion eines Szintillatorkristalls. Links, Neutronen-CT-Slice. Mittig, Gamma-CT-Slice. Rechts, Resultat der Division von Neutronen-CT mit Gamma-CT.

Des Weiteren wurde die Auflösung für Messungen mit schnellen Neutronen durch Einsatz neuer Szintillatormaterialien der Firma RC TRITEC, in Zusammenarbeit mit einer Gruppe von Wissenschaftlern des Paul-Scherer-Institutes, verbessert. Als Resultat entstanden die ersten Messungen mit schnellen Neutronen mit einer Bildauflösung im Bereich der $100\mu\text{m}$ (siehe Grafik 3). Die Messungen werden derzeit in ein Manuskript zur Veröffentlichung verfasst, mit Titel: „Improvement in the spatial resolution for imaging with fast neutrons“, von E. Lehmann *et al.*



Grafik 3: Messungen mit schnellen Neutronen eines Fe-Testobjektes mit ZnS-basierenden Szintillatoren. Links, Radiograf aufgezeichnet mit PP/ZnS:Cu Standard Szintillator. Rechts, Radiograf aufgezeichnet mit neuem PE/ZnS:Ag Szintillatorkonzept und verbesserter Auflösung.

Die erhöhte Auflösung für schnelle Neutronen ist ein Meilenstein in der Verbesserung der Methode. Aufgrund der bisher niedrigen Auflösung im 0.5mm Bereich konnten so wichtige Informationen wie Einschlüsse oder Risse in großen Objekten nicht gemessen werden. Diese Messungen wurden durch die erhöhte Kollimation mit Einsatz des neuen Revolver-Kollimators ermöglicht. Dieser Durchbruch ist sehr vielversprechend und ermöglicht es neue User am NECTAR Instrument zu werben, welche schnelle Neutronen für verschiedenste Anwendungen nutzen können. Die Ersten Messungen mit erhöhter Auflösung für schnelle Neutronen sind im Sommer dieses Jahres in Zusammenarbeit mit der Universität Tübingen an Fossilien geplant.

6 Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit

Innerhalb des Projekts NECTAR konnte der Messplatz für die gleichzeitige Nutzung thermischer und schneller Neutronen für radiographische und tomographische Aufnahmen erfolgreich erweitert werden. Die erreichbaren Sichtfelder können dem jeweiligen Messproblem angepasst werden und eine minimale Auflösung für thermische Neutronen von 50 μ m wird erreicht. Für schnelle Neutronen konnte die Auflösung von 500 μ m auf 100 μ m verbessert werden. Besonders hervorzuheben ist die neu implementierte bimodale Radiographie, bei der die ebenfalls anfallende Gammastrahlung für radiographische Aufnahmen parallel zur Neutronenradiographie verwendet werden kann. Die routinemäßige Einbindung der bimodalen Radiographie ist in dieser Form weltweit einmalig. Der Umbau zwischen den einzelnen Messmodi kann effizient durchgeführt werden und Betrieb und Justage sind weitgehend automatisiert, bzw. motorisiert und in die Nutzersoftware eingebunden. Der neu gebaute Objektisch ist geeignet für Proben mit mehr als 500kg Gewicht und kann sowohl kleine als auch sehr massive Proben positionieren und rotieren. Die Aufbauten sind automatisiert und in das MLZ Steuerkonzept NICOS eingebunden. Alle Aufwendungen waren notwendig um eine effiziente Nutzung schneller und thermischer Neutronen sowie Gammastrahlung für radiographische und tomographische Untersuchungen an Objekten und Werkstücken für die FRM II Nutzerschaft zu ermöglichen.

7 **Voraussichtlicher Nutzen, insbesondere Verwertbarkeit der Ergebnisse**

Der neue Aufbau ermöglicht die Untersuchung an Energiespeichersystemen, wie Li-Ionenbatterien, Wasserstoffspeicher, biologischer Objekte oder archäologischer Artefakte mit einer deutliche verbesserten Ortsauflösung und variabler Kontrastvariation. Die Kombination dieser Verfahren ist in dieser Form weltweit einzigartig. Das MLZ hat zugesichert den Betrieb der Anlage weiterzuführen.

8 **Während der Durchführung des Vorhabens dem Zuwendungsempfänger bekannt gewordenen Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen**

keine

9 **Erfolgte und geplante Veröffentlichungen der Ergebnisse**

9.1 **Referierte Publikationen (z. B. in Fachzeitschriften oder -büchern und referierte Konferenzproceedings)**

M.J. Mühlbauer, T. Bücherl, C. Genreith, M. Knapp, M. Schulz, S. Söllradl, F.M. Wagner, H. Ehrenberg; The thermal neutron beam option for NECTAR at MLZ; Physics Procedia 88 (2017) 148 – 153. doi:10.1016/j.phpro.2017.06.020

M.J. Mühlbauer, O. Dolotko, M. Hofmann, H. Ehrenberg, A. Senyshyn; Effect of fatigue/ageing on the lithium distribution in cylinder-type Li-ion batteries; J. Power Sources 348 (2017) 145-149. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2017.02.077>

M.J. Mühlbauer, T. Bücherl, M. Kellermeier, M. Knapp, M. Makowska, M. Schulz, S. Zimnik, H. Ehrenberg; Neutron imaging with fission and thermal neutrons at NECTAR at MLZ; Physica B: Condensed Matter 551 (2018) 359–363. doi:10.1016/j.physb.2017.11.088

Daniel R. Sørensen, Michael Heere, Jiangong Zhu, Mariyam S. D. Darma, Samantha M. Zimnik, Martin J. Mühlbauer, Liuda Mereacre, Volodymyr Baran, Anatoliy Senyshyn, Michael Knapp, Helmut Ehrenberg; Fatigue in High-Energy Commercial Li Batteries while Cycling at Standard Conditions: An In Situ Neutron Powder Diffraction Study; ACS Appl. Energy Mater. 2020, 3, 6611–6622. <https://dx.doi.org/10.1021/acsaem.0c00779>

9.2 **Andere Veröffentlichungen (z. B. Konferenzbeiträge wie Vorträge und Poster, unreferierte Proceedings, Conference Notes)**

- '8th International Topical Meeting on Neutron Radiography (ITMNR-8)', Peking (2016)
- 'International Conference on Neutron Scattering 2017' in Daejeon, Südkorea (2017)
- 'World Conference on Neutron Radiography' in Sydney, Australien (2018)
- Publikation im MLZ Newsletter 21 (2018)
- Joint Annual Report 2018 of the MLZ and FRM II
- Publikation im MLZ Newsletter 24 (2020)

9.3 **Abschlussarbeiten (Bachelor, Master, Diplom, Staatsexamen, Promotion, Habilitation)**

Kurzbericht

- öffentlich -

Zuwendungsempfänger: Karlsruher Institut für Technologie (KIT)

Projektleitung: Prof. Helmut Ehrenberg

Verbund:

Thema: Thermische Neutronen am Messplatz NECTAR

1. Ziel und Inhalt des Projektes

An der Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz in Garching bei München betreibt die TU München am Strahlrohr 10 zwei Bestrahlungspositionen, an denen ein Spaltneutronenspektrum zur Verfügung steht. Es sind dies die Anlage MedApp für die medizinische Bestrahlung von Patienten und die Anlage NECTAR für zwei- und dreidimensionale bildgebende Untersuchungen an technischen Proben mittels Neutronradiographie und –tomographie.

Die vom zentralen Brennelement freigesetzten Neutronen werden im Schwerwassertank thermalisiert, bevor sie die Strahlrohrnase erreichen. Hier sind im Standardbetrieb Konverterplatten positioniert, die hochangereichertes Uran enthalten. Durch den Einfang der thermischen Neutronen und die nachfolgende Kernspaltung wirken diese Konverterplatten als sekundäre Quelle für schnelle Spaltneutronen. Diese stehen nach dem Passieren der Instrumentshutter und der Filterbank an den beiden Messpositionen zur Verfügung. Das beantragte Projekt soll den Messplatz NECTAR um ein zusätzliches thermisches Neutronenspektrum für tomographische Untersuchungen und andere Bestrahlungsexperimente (z.B. für medizinisch pharmazeutische Vorhaben wie „NanoMediPharm“) erweitern und die Methodik, um die mit thermischen und schnellen Neutronen gewonnenen Daten in einem kombinierten Auswerteverfahren nutzen zu können, zur Verfügung zu stellen. Hierdurch ergibt sich weltweit einmalig die Möglichkeit, kombinierte tomographische Untersuchungen an einer Probe sowohl mit hochenergetischen als auch mit thermischen Neutronen durchzuführen und zusammen mit den kalten Neutronen am Messplatz ANTARES das Spektrum zu vervollständigen.

Im Rahmen dieses Projektantrags stehen dabei in situ Untersuchungen von Lithiumionenzellen und Batteriesystemen im Vordergrund. Die neu geschaffenen Messmöglichkeiten dienen z.B. zur Aufklärung von Ermüdungsmechanismen und tragen zur Entwicklung verbesserter Energiespeichersysteme bei. Die Erweiterung des am SR10 zur Verfügung stehenden Neutronenenergiebereichs hin zu thermischen Neutronen ist jedoch auch für andere Arbeitsgruppen von Interesse, da die thermische Option kombinierte Experimente an NECTAR ermöglicht, die andernfalls an zwei separaten Instrumenten durchgeführt werden müssten. Die geplante thermische Option erfüllt dabei alle Anforderungen, die aktuell für solche Anlagen als „state-of-the-art“ betrachtet werden. Ein Einbinden der thermischen Option in den Betrieb der bereits existierenden Anlage mit schnellen Neutronen führt nicht nur zu einer weltweit einzigartigen Kombination der beiden Energiespektren, sondern es werden auch viele, der mitunter kostenintensiven Punkte bei

der Installation einer entsprechenden Anlage durch die bereits vorhandene Infrastruktur abgedeckt

2. Ablauf und Ergebnisse des Vorhabens

Die Ziele des Vorhabens wurden erreicht. Wegen des mehrfachen Wechsels bei den betreuenden Wissenschaftlern kam es zu zeitlichen Verzögerungen. Durch die Anschaffung neuer Detektoren verfügt der Messplatz nun neben einer verbesserten räumlichen Auflösung bei schnellen Neutronen (Verbesserung von 500 μm auf 100 μm) über eine Auflösung von 50 μm bei thermischen Neutronen. Durch den Wechsel zwischen mehreren Detektorsystemen kann Sichtfeld und Auflösung dem Messproblem angepasst werden. Die Primäroptik wie Kollimator, Blenden, Kollimatorplatten wurden erneuert, vollständig automatisiert und in die Steuersoftware eingebunden, so dass ein Wechsel zwischen verschiedenen Messmodi effizient durchgeführt werden kann.

Nach einem weiteren Ausbau verfügt der Messplatz jetzt außerdem über die Möglichkeit der Nutzung der gleichzeitig im Reaktor entstehenden Gamma-Strahlung (bimodale Tomographie) was das Anwendungsspektrum im Bereich Tomographie und Radiographie weiter vergrößert.

Ein neu konstruierter und gebauter Probenstisch ermöglicht die Untersuchung von Objekten bis 500kg Gewicht und erlaubt die Positionierung von Objekten unterschiedlicher Größe unmittelbar vor dem Detektor, was den Parallaxenfehler in der Abbildung deutlich reduziert.

3. Konkreter Nutzen sowie Anwendungsmöglichkeiten der Ergebnisse

Der Messplatz NECTAR ist durch die im Projekt durchgeführte Erweiterung nun in der Lage neben Bestrahlungsexperimenten insbesondere auch radiographische und tomographische Untersuchungen mit schnellen und thermischen Neutronen an Objekten unterschiedlichster Größe durchzuführen. In Kombination mit der kürzlich implementierten Gammastrahlen Tomographie (bimodale Tomographie) sind nun weltweit einzigartige Experimente bezüglich Kontrast und Auflösungsvermögen möglich. Die untersuchten Objekte umfassen neben mechanischen Werkstücken auch in-situ Experimente an Batteriezellen, Untersuchungen an archäologischen Artefakten oder an biologischen Proben. Der Messplatz wird im Rahmen des regulären Nutzerbetriebs der nationalen und internationalen wissenschaftlichen Nutzergemeinde zur Verfügung gestellt.