



# Uran aus deutschen Nuklearprojekten der 1940er Jahre – eine nuklearforensische Untersuchung

Klaus Mayer, Maria Wallenius,\* Klaus Lützenkirchen, Joan Horta, Adrian Nicholl, Gert Rasmussen, Pieter van Belle, Zsolt Varga, Razvan Buda, Nicole Erdmann, Jens-Volker Kratz, Norbert Trautmann, L. Keith Fifield, Stephen G. Tims, Michaela B. Fröhlich und Peter Steier

**Abstract:** Wir berichten hier über eine nuklearforensische Analyse verschiedener Uranmaterialien aus deutschen Nuklearprojekten der 1940er Jahre, bei denen Uranmetall in verschiedenen Geometrien verwendet wurde. Mithilfe des  $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ -Isotopenverhältnisses konnte für das Metall ein Produktionszeitraum von 1940 bis 1943 bestimmt werden. Die geographische Herkunft des Urans wurde anhand des Spurengehalts an Seltenerdelementen und der Strontium-Isotopenverhältnisse bestimmt. Die Ergebnisse zeigen, dass das bei den deutschen Nuklearprojekten verwendete Uran aus Minen in der Tschechischen Republik stammt.  $^{236}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$  wurden in Spuren nachgewiesen. Diese entsprechen in etwa der Häufigkeit dieser Isotope in Uranerzen, woraus sich ableiten lässt, dass die untersuchten Uranmetalle keinem signifikanten Neutronenfluss ausgesetzt waren.

Schon bald nach Entdeckung der Kernspaltung<sup>[1]</sup> wurde deren Potential als nutzbare Energiequelle erkannt. Innerhalb weniger Monate nach der Entdeckung konnten verschiedene Charakteristika des Spaltprozesses identifiziert werden,<sup>[2]</sup> und im Jahr 1942 wurde die erste künstliche nukleare Kettenreaktion erzeugt. Als Folge wurden in den USA und in Deutschland Projekte zur technischen Nutzung der Kernspaltung initiiert.<sup>[3]</sup> Inwieweit die deutschen Nuklearprojekte der 1940er Jahre eine militärische Intention hatten oder auf die Konstruktion eines Kernreaktors zur Energieproduktion zielten – oder eine Kombination beider – wurde bereits vielfach diskutiert.<sup>[3b–d,5]</sup> Die Experimente zur Neutronenmultiplikation in verschiedenen Brennstoffanordnungen

wurden von zwei Gruppen unter Leitung von W. Heisenberg am KWI für Physik, Berlin, und von K. Diebner vom Heereswaffenamt durchgeführt. Die Gruppe um Heisenberg verwendete alternierende Schichten von Brennstoff und Moderator, wie etwa Uranplatten (mit K. Wirtz in Berlin), während die Gruppe um Diebner von einer Würfelanordnung ausging.<sup>[3d,4a,b]</sup> Heisenberg übernahm später die Würfelanordnung, nachdem er deren überlegene Neutronenökonomie erkannt hatte.

Das letzte Experiment, B8, fand im März 1945 statt,<sup>[3a]</sup> nach dem Umzug des KWI für Physik nach Hechingen, nahe Haigerloch im Schwarzwald. Anstelle der Uranplatten wurden 664 Würfel aus Uranmetall (ca. 1.5 t Uran) der Diebnerschen Gruppe als Brennstoff genutzt (Abbildung 1),<sup>[4a]</sup> womit eine Neutronenmultiplikation um den Faktor 6.7 erreicht wurde. Das Erreichen der Kritikalität wurde für ein um 50 % größeres Reaktorvolumen erwartet.<sup>[4a]</sup>

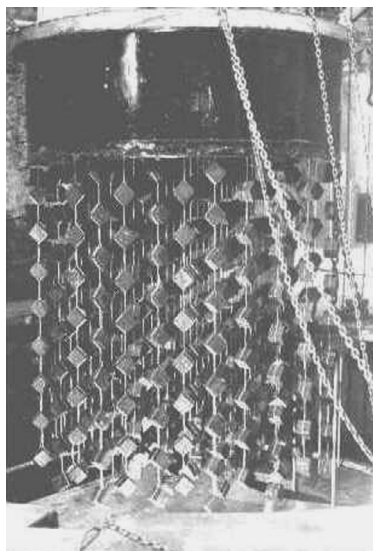
Die meisten Uranwürfel wurden im April 1945 von der ALSOS-Mission beschlagnahmt.<sup>[3a,b,4c]</sup> Etwa 20 Jahre später tauchten etliche Würfel (im Folgenden „Heisenberg-Würfel“ genannt) in Süddeutschland auf. Einer der Würfel wurde 1998 vom Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) untersucht<sup>[6]</sup> und zur Klärung der Authentizität mittels nuklearer Forensik an das ITU geschickt. Zwei Jahre später wurde am Max-Planck-Institut (MPI) für Kernphysik in Heidelberg eine Platte aus Uranmetall aufgefunden. Diese Platte (im Folgenden „Wirtz-Platte“ genannt) wurde in Zusammenhang gebracht mit den Experimenten der Heisenberg-Wirtz-Gruppe; die weitere Untersuchung erfolgte ebenfalls am ITU.

[\*] Dr. K. Mayer, Dr. M. Wallenius, Dr. K. Lützenkirchen, J. Horta, A. Nicholl, G. Rasmussen, P. van Belle, Dr. Z. Varga, Dr. R. Buda, Dr. N. Erdmann  
European Commission, Joint Research Centre (JRC)  
Institute for Transuranium Elements (ITU)  
Postfach 2340, 76125 Karlsruhe (Deutschland)  
E-Mail: Maria-S.Wallenius@ec.europa.eu  
Dr. R. Buda, Dr. N. Erdmann, Prof. Dr. J.-V. Kratz, Prof. Dr. N. Trautmann  
Institut für Kernchemie, Universität Mainz  
Fritz-Strassmann-Weg 2, 55128 Mainz (Deutschland)  
Prof. L. K. Fifield, Dr. S. G. Tims, Dr. M. B. Fröhlich  
Department of Nuclear Physics, Research School of Physics and Engineering, The Australian National University  
Canberra ACT 2601 (Australien)

Dr. M. B. Fröhlich  
Universität Wien, Fakultät für Chemie  
Institut für Anorganische Chemie  
Althanstraße 14, 1090 Wien (Österreich)  
Dr. P. Steier  
Universität Wien, Fakultät für Physik  
Isotopenforschung und Kernphysik  
Währinger Straße 17, 1090 Wien (Österreich)

Hintergrundinformationen zu diesem Beitrag sind im WWW unter <http://dx.doi.org/10.1002/ange.201504874> zu finden.

© 2015 Die Autoren. Veröffentlicht von Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA. Dieser Open Access Beitrag steht unter den Bedingungen der Creative Commons Attribution Non-Commercial NoDerivs License, die eine Nutzung und Verbreitung in allen Medien gestattet, sofern der ursprüngliche Beitrag ordnungsgemäß zitiert und nicht für kommerzielle Zwecke genutzt wird und keine Änderungen und Anpassungen vorgenommen werden.



**Abbildung 1.** Photo des B8-„Uranbrenners“ mit 664 Würfeln.<sup>[4a]</sup>

Die hier vorgestellten Experimente sind als nuklearfor-  
sensische Untersuchung strukturiert<sup>[7]</sup> und zielen auf die fol-  
genden Fragestellungen ab:

Welches sind die makroskopischen Parameter und die  
Elementzusammensetzung des Materials? Was ist sein Alter,  
d. h. wie lange liegt die letzte chemische Trennung des Urans  
von seinen Zerfallsprodukten zurück? Ist das Isotop  $^{235}\text{U}$  in  
den Uranmetallen angereichert? War das Uran einem signi-  
fikanten Neutronenfluss ausgesetzt? Wo wurde das für die  
Herstellung der Uranmetalle verwendete Uranerz gefördert?

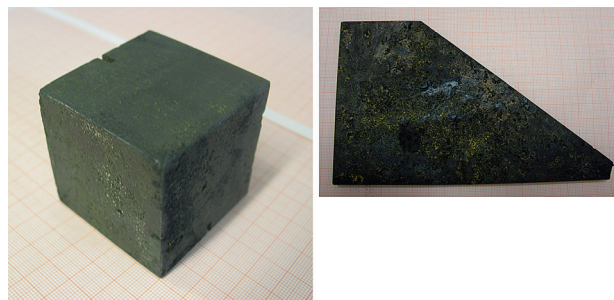
Zur Beantwortung dieser Fragen wurden verschiedene  
charakteristische Größen bestimmt, wie etwa die Isotopen-  
verhältnisse  $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ ,  $^{234,235,236}\text{U}/^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}/^{238}\text{U}$  und  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$   
sowie die Häufigkeitsverteilung der Seltenerdelemente  
(SEE). Etliche dieser Größen wurden auch für eine Probe  
von Ammoniumdiuranat („yellow cake“) aus dem Labor von  
Hahn und Straßmann am KWI für Chemie in Berlin (im  
Folgenden genannt „Hahn-YC“) sowie für Uranerz und  
Uranerzkonzentrate (UOC) aus Joachimsthal/Jáchimov  
(Erzgebirge) und der Shinkolobwe-Mine (im ehemaligen  
Belgisch Kongo) als potenzielle Herkunftsorte des Urans. Die  
Ergebnisse stellen einen experimentellen Beitrag dar zur  
Diskussion deutscher Nuklearprojekte während der ersten  
Hälfte der 1940er Jahre.

#### Experimentelles

Die folgenden drei Uranmetallproben wurden untersucht:  
180 mg Pulver von einem Uranwürfel des BfS (Heisenberg-  
Würfel I), eine Scheibe (47.8 g, 1 mm dick), die von einem  
Würfel des „Atomkeller-Museums“ in Haigerloch abgesägt  
wurde (Heisenberg-Würfel II), sowie etliche kleinere, von der  
Wirtz-Platte abgesägte Stücke (Abbildung 2).

Mit dem Heisenberg-Würfel I wurden aufgrund der geringen  
Probenmenge nur wenige Messungen durchgeführt; alle Er-  
gebnisse zum Würfel stammen, falls nicht explizit erwähnt,  
vom Exemplar II.

Uranproben wurden in Salpetersäure gelöst und chemisch  
aufgetrennt<sup>[8]</sup> zur Analyse der Elemente Sr, Th, U und Pu



**Abbildung 2.** Photos der analysierten Proben. Links: Heisenberg-Wür-  
fel I (5 cm × 5 cm × 5 cm). Rechts: Wirtz-Platte (Trapez mit 18 cm Basis,  
1 cm Dicke, abgebrochene Spitze unten rechts).

mittels folgender Methoden: Thermionen-Massenspektro-  
metrie (TIMS) für  $^{234,235,236,238}\text{U}$ ,<sup>[9]</sup> Beschleuniger-Massen-  
spektrometrie (AMS) für  $^{236}\text{U}$ ,<sup>[10]</sup> Massenspektrometrie mit  
induktiv gekoppeltem Plasma und Multikollektor (MC-ICP-  
MS) für Strontiumisotope,<sup>[8a]</sup> Sektorfeld-ICP-MS für Selte-  
nerdelemente<sup>[8b]</sup> und Altersbestimmung, Alpha-Spektrome-  
trie (AS) für Altersbestimmung<sup>[11]</sup> und Resonanzionisations-  
Massenspektrometrie (RIMS) für  $^{239}\text{Pu}$ .<sup>[12]</sup> Alle genannten  
Messfehler entsprechen einer 2 $\sigma$ -Standardabweichung („ex-  
panded uncertainty with coverage factor“  $k = 2$ ), falls nicht  
anders angegeben.

#### Makroskopische Untersuchung

Der Heisenberg-Würfel hat eine Kantenlänge von 5 cm und  
eine Masse von 2.4 kg. In der Mitte zweier gegenüberliegen-  
der Kanten befindet sich je eine Einkerbung (Abbildung 2,  
links) für die Befestigungsdrähte (siehe Abbildung 1). Die  
Wirtz-Platte hat die Form eines Trapezes mit 18 cm Basis,  
1 cm Dicke und einer fehlenden Spitze von etwa 1 cm (Ab-  
bildung 2, rechts).

Die Heisenberg-Würfel entsprechen der Beschreibung der  
Uranmetallwürfel, die von Degussa in den Jahren 1943–1944  
hergestellt und in den G3- und B8-Experimenten verwendet  
wurden.<sup>[4a]</sup> Die Wirtz-Platte ist vermutlich das Bruchstück  
einer größeren Metallplatte, wie sie für frühere Experimente  
produziert und verwendet wurden (z. B. B6, B7).<sup>[4c]</sup> Die Form  
der analysierten Proben legt daher nahe, dass sie für die  
Reaktorexperimente der Gruppen um Heisenberg und  
Diebner produziert wurden.

#### Analyse von Uranisotopen

Isotopenverhältnisse des Urans wurden im Heisenberg-  
Würfel, der Wirtz-Platte und der Hahn-YC-Probe gemessen.  
Das  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Atomzahlverhältnis stimmt bei den drei Proben  
gut überein (Tabelle 1) und entspricht dem natürlichen Ver-  
hältnis,<sup>[13]</sup> in den Proben befindet sich also kein angereicher-

**Tabelle 1:** Mit TIMS ermittelte  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ - und  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Isotopenverhält-  
nisse (Zahl der Atome).

Probe	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
Heisenberg-Würfel	$(7.2526 \pm 0.0053) \times 10^{-3}$	$(5.4809 \pm 0.0067) \times 10^{-5}$
Wirtz-Platte	$(7.2531 \pm 0.0053) \times 10^{-3}$	$(5.4781 \pm 0.0074) \times 10^{-5}$
Hahn-YC	$(7.2584 \pm 0.0103) \times 10^{-3}$	$(5.4819 \pm 0.0120) \times 10^{-5}$

tes  $^{235}\text{U}$ . Dieses Ergebnis passt zum damaligen Stand der deutschen Anreicherungstechnologie,<sup>[5]</sup> die sich in einem Entwicklungsstadium befand.<sup>[14]</sup> Die natürliche Häufigkeit von  $^{234}\text{U}$  kann hingegen aufgrund chemischer Fraktionierungseffekte variieren, z. B. durch bevorzugte Auslaugung des  $^{234}\text{U}$  durch  $\alpha$ -Rückstoß als Folge des  $^{238}\text{U}$ - $\alpha$ -Zerfalls. Das  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Verhältnis wird daher als Parameter für die Geolokalisierung verwendet. Die hier gemessenen  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Verhältnisse sind hingegen nicht signifikant verschieden. Dies legt nahe, dass das für die drei Proben verwendete Uranerz aus derselben Mine stammt.

#### Isotopen- und Elementanalyse von Spurenbestandteilen

Die Isotopenzusammensetzung von Spurenbestandteilen in Uranerzen (z. B. Sr) kann Hinweise auf den Herkunftsort des verarbeiteten Urans liefern: Im Verlauf der Uranerzverarbeitung gelangt im allgemeinen ein Teil der Spurenelemente unter Erhaltung der ursprünglichen Isotopenverhältnisse in das Produktmaterial. Dies gilt auch für die Verteilung von Elementhäufigkeiten, falls die Elemente ähnliche chemische Eigenschaften aufweisen, wie im Fall der SEE.

Das  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ -Verhältnis variiert in UOC um bis zu 10 %, von etwa 0.70 bis 0.76.<sup>[8a]</sup> Es hängt vom Typ und vom Alter des Uranerzes ab sowie vom Rb/Sr-Verhältnis. In ähnlicher Weise können die SEE-Häufigkeiten zur Unterscheidung verschiedener Minen und geologischer Strukturen dienen.<sup>[8b]</sup> Als Signaturen kommen die Form der Häufigkeitsverteilung sowie eine Europium- oder Cer-Häufigkeitsanomalie in Frage. Die im Heisenberg-Würfel, der Wirtz-Platte und der Hahn-YC-Probe gemessenen  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ -Verhältnisse von 0.7037(33), 0.7078(10) bzw. 0.7071(30) stimmen im Rahmen der Messfehler überein. Der  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ -Wert für Uranerz aus Joachimsthal liegt im Bereich von 0.703 bis 0.707,<sup>[15]</sup> UOC aus Belgisch Kongo (Archivprobe ITU) hat hingegen einen höheren Wert von 0.71101(8). Die Sr-Isotopenverhältnisse in den untersuchten Uranproben liegen im Bereich der für Joachimsthal-Erz bekannten Werte.

Die Häufigkeitsverteilung der SEE in den Uranmetallproben und im Hahn YC sind in Abbildung 3 dargestellt, normiert auf den SEE-Gehalt in Chondriten. Zwei Erzproben aus Joachimsthal und Shinkolobwe sowie UOC aus dem früheren

Belgisch Kongo wurden als Referenzen gemessen, da Deutschland im diskutierten Zeitraum zu Uranmaterialien aus diesen Regionen Zugang hatte.<sup>[3a]</sup> Die beiden Uranlagerstätten sind von unterschiedlicher geologischer Formation (Joachimsthal – granitisch, Shinkolobwe – metamorphisch<sup>[16]</sup>). Die Proben von Uranmetall, Joachimsthal-Erz und Hahn-YC haben eine ähnliche SEE-Verteilung (signifikante Eu-Anomalie und abfallende Häufigkeiten in Richtung schwerer SEE). Die SEE-Häufigkeiten in Shinkolobwe-Erz und UOC aus dem früheren Belgisch Kongo sind hingegen deutlich verschieden (Glockenkurve, keine Eu-Anomalie). Dies ist ein deutlicher Hinweis darauf, dass das für den Heisenberg-Würfel, die Wirtz-Platte und den Hahn-YC verwendete Uranerz in der Gegend von Joachimsthal abgebaut wurde.

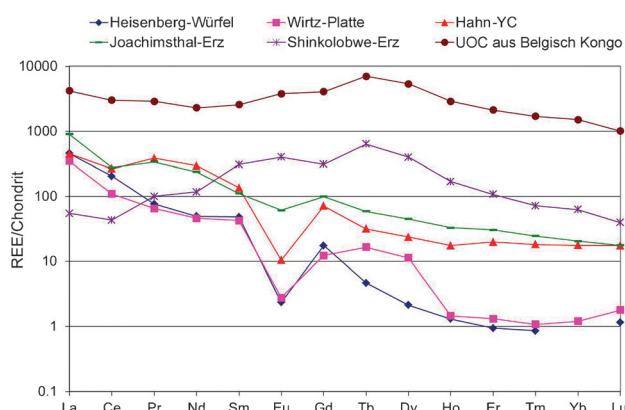
#### $^{236}\text{U}$ und $^{239}\text{Pu}$ als Neutronenflussindikatoren

$^{236}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$  werden in Reaktorsystemen durch Neutroneneinfang aus  $^{235}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  erzeugt. Da die  $^{236}\text{U}$ -Häufigkeiten in den Uranmetallproben unterhalb der mit TIMS erreichbaren Nachweisgrenze liegen, wurden die  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Isotopenverhältnisse mittels AMS<sup>[10,17]</sup> bei ANU, Canberra, und UW, Wien, bestimmt. Die  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Verhältnisse (Tabelle 2)

**Tabelle 2:**  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Atomzahlverhältnisse und  $^{239}\text{Pu}/\text{U}$ -Massenverhältnisse (g/g U) verschiedener mittels AMS und RIMS vermessener Proben. Die Daten sind Mittelwerte von 2 bis 6 unabhängigen Messungen; Messunsicherheiten von  $1\sigma$  ( $k=1$ ).

Probe	$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ [ $\times 10^{-10}$ ]	$^{239}\text{Pu}/\text{g U}$ [ $\times 10^{-14}$ ]
Heisenberg-Würfel	$0.91 \pm 0.05^{[a]}$ $1.00 \pm 0.04^{[b]}$	$1.6 \pm 0.8^{[c]}$
Wirtz-Platte	$1.10 \pm 0.05^{[a]}$ $1.11 \pm 0.03^{[b]}$	$1.4 \pm 0.7^{[c]}$
Hahn-YC	$1.02 \pm 0.03^{[b]}$	–
Joachimsthal-Erz	–	$8.5 \pm 2.8^{[c]}$

[a] Daten von ANU, Canberra. [b] Daten von UW, Wien. [c] Daten von UM, Mainz.



**Abbildung 3.** Häufigkeitsverteilung der Seltenerdelemente (SEE) der untersuchten Uranproben, normiert auf den chondritischen SEE-Gehalt.

sind von der Größenordnung  $10^{-10}$  in den Uranmetallen und im Hahn-YC. Die Verhältnisse liegen im für Uranerze typischen Bereich<sup>[10b]</sup> von  $10^{-12}$  bis  $3 \times 10^{-10}$ . Das  $^{236}\text{U}$  in den untersuchten Proben ist daher natürlichen Ursprungs. Das  $^{236}\text{U}/\text{U}$ -Verhältnis in der Natur wird vom lokalen thermischen Neutronenfluss bestimmt, der selbst innerhalb derselben Uranlagerstätte Inhomogenitäten aufweisen kann. Literaturwerte für Erz aus Joachimsthal (Jachymov, Tschechische Republik) liegen im Bereich von  $(3.18 \pm 0.43) \times 10^{-11}$ <sup>[10b]</sup> bis  $(9.0 \pm 2.0) \times 10^{-11}$ .<sup>[18]</sup> Die Werte der drei untersuchten Proben sind mit diesem Bereich kompatibel. Der geringe Unterschied der Isotopenverhältnisse für den Heisenberg-Würfel und die Wirtz-Platte deuten allerdings darauf hin, dass die für die Herstellung verwendeten Uranerze aus unterschiedlichen Produktionskampagnen stammen könnten.

Der Nachweis von  $^{239}\text{Pu}$  erfolgte mittels RIMS aufgrund der gegenüber TIMS höheren Empfindlichkeit. Die  $^{239}\text{Pu}/\text{U}$ -Massenverhältnisse des Würfels und der Platte stimmen im Rahmen der Messunsicherheit überein und liegen im Bereich von  $(1-2) \times 10^{-14}$  (Tabelle 2).



Das  $^{239}\text{Pu}/\text{U}$ -Verhältnis der Joachimsthaler Uranerzprobe beträgt hingegen ca.  $10^{-13}$ , es liegt daher um den Faktor 6 über den Werten der Uranmetallproben und ist von derselben Größenordnung wie die  $^{239}\text{Pu}$ -Verhältnisse in natürlichen Uranerzen.<sup>[10b]</sup> Bei der Herstellung des Uranmetalls wurden Zerfallsprodukte des Urans einschließlich Thorium aus dem Rohmaterial abgetrennt. In den frühen 1940er Jahren hatte man in Deutschland keine Informationen über Plutonium und seine chemischen Eigenschaften. Bei der Herstellung der Uranmetalle dürfte daher ein Großteil des Plutoniums gemeinsam mit Thorium abgetrennt worden sein, falls es sich im vierwertigen Zustand befand. Die Bildung von  $^{239}\text{Pu}$  durch Neutroneneinfang während der B8-Reaktorexperimente ist hingegen vernachlässigbar gering, selbst für den Fall einer hypothetischen Kritikalität: Geht man aus vom Neutronenfluss einer als Initiator verwendeten RaBe-Quelle,<sup>[4a]</sup> einem Beitrag durch Neutronen aus der Spontanspaltung von  $^{238}\text{U}$ , der bei B8 erzielten Neutronenmultiplikation von  $6.7^{[4a]}$  und der Annahme einer einwöchigen Bestrahlung, so erhält man ein  $^{239}\text{Pu}/\text{U}$ -Verhältnis von etwa  $10^{-16}$ . Unter der Annahme einer höheren Neutronenmultiplikation bis hin zur Kritikalität – etwa unter den für Fermis CP-1-Reaktor in Chicago bekannten Bedingungen einer 4.5-minütigen Laufzeit bei einer Leistung von  $0.5 \text{ W}^{[4a]}$  – so erhält man ein  $^{239}\text{Pu}/\text{U}$ -Verhältnis von  $7 \times 10^{-16}$ . Der überwiegende Teil des im Heisenberg-Würfel und der Wirtz-Platte nachgewiesenen  $^{239}\text{Pu}$  sollte daher natürlichen Ursprungs sein und aus der Abreicherung des Rohmaterials stammen; ein signifikanter Beitrag durch Neutronenbestrahlung der Uranmetalle ist nicht erkennbar.

#### Altersbestimmung

Unter dem Alter eines Uranmaterials, das sich aus dem gemessenen  $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ -Verhältnis bestimmen lässt, ist die Zeit zu verstehen, die seit der letzten chemischen Trennung des Urans von seinen Zerfallsprodukten vergangen ist. Im Fall der Uranmetalle ist dies der Zeitpunkt des Gießens. Die Heisenberg-Würfel wurden in der zweiten Hälfte des Jahres 1943 hergestellt, die Wirtz-Platte etwa drei Jahre früher (Tabelle 3). Der Zeitraum der Würfelproduktion ist vereinbar

**Tabelle 3:** Altersbestimmung von Uranmaterialien mittels Isotopenverdünnungs-Alpha-spektrometrie (ID-AS) und Massenspektrometrie (ICP-MS); Produktionsdaten mit  $1 \sigma$  Messunsicherheit,  $k = 1$ .

Probe	ID-AS	ICP-MS
Heisenberg-Würfel I	Dez 1943 $\pm 1.5$ a	Sep 1943 $\pm 2.0$ a
Heisenberg-Würfel II	Jun 1944 $\pm 0.8$ a	Sep 1943 $\pm 0.5$ a
Wirtz-Platte	Aug 1940 $\pm 0.3$ a	–

mit Literaturinformationen über einen Wechsel des Reaktordesigns von alternierenden Brennstoff-/Moderatorschichten hin zu Uranwürfeln mit  $\text{D}_2\text{O}$  als Moderator.<sup>[4c]</sup> Die Altersbestimmung bestätigt daher die Authentizität von Heisenberg-Würfel und Wirtz-Platte.

#### Zusammenfassung

Zwei Uranmetalle wurden mit nuklearforensischen Methoden analysiert – „Heisenberg-Würfel“ und „Wirtz-Platte“ – und als authentische Proben aus dem deutschen Nuklear-

programm der 1940er Jahre bestätigt. Die Proben zählen zu den ältesten weltweit bekannten Uranwerkstücken, hergestellt für Untersuchungen zur Neutronenmultiplikation in Reaktorsystemen. Die Authentizität der Proben wurde bestätigt 1) durch Vergleich makroskopischer Probenparameter mit Literaturinformationen und 2) durch Bestimmung des Produktionsdatums (Alter) von 1940 für die Wirtz-Platte und 1943/1944 für den Heisenberg-Würfel. Das verwendete Uranerz wurde in der Gegend von Joachimsthal abgebaut, Belgisch Kongo kann als Herkunftsort des Erzes aufgrund der Häufigkeitsverteilung der Seltenerdelemente ausgeschlossen werden. Die Isotope  $^{236}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$  wurden als Neutronenflussmonitor verwendet. Die gemessenen Häufigkeiten sind mit natürlichen Werten kompatibel und geben keinen Hinweis auf einen signifikanten neutroneninduzierten Beitrag durch die Reaktorexperimente.

#### Danksagung

Wir danken D. E. Becker (ehemals BfS), dem Atomkeller-Museum in Haigerloch und dem Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg, für Proben der „Heisenberg-Würfel“ und der „Wirtz-Platte“. Eine Probe von Uranerzkonzentrat aus dem früheren Belgisch Kongo wurde von Nexia Solutions (Springfield, U.K.) zur Verfügung gestellt, unterstützt von der U.K. Atomic Energy Authority. Eine Uranerzprobe aus Shinkolobwe wurde von der TU Bergakademie, Freiberg, zur Verfügung gestellt.

**Stichwörter:** Heisenberg, Werner · Massenspektrometer · Nukleare Forensik · Uran · Wirtz, Karl

**Zitierweise:** *Angew. Chem. Int. Ed.* **2015**, *54*, 13452–13456  
*Angew. Chem.* **2015**, *127*, 13654–13658

- [1] O. Hahn, F. Strassmann, *Naturwissenschaften* **1939**, *27*, 11–15.
- [2] G. Herrmann, *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **1990**, *29*, 481–508; *Angew. Chem.* **1990**, *102*, 469–496.
- [3] a) R. Rhodes, *The Making of the Atomic Bomb*, Simon & Schuster, New York, **1986**; b) M. Walker, *German National Socialism and the Quest for Nuclear Power 1939–1949*, Cambridge University Press, **1989**; c) T. Powers, *Heisenberg's War: The Secret History of the German Bomb*, Da Capo Press, **1993**; d) M. Walker, Eine Waffenschmiede? Kernwaffen- und Reaktorforschung am Kaiser-Wilhelm-Institut für Physik, Research Program „History of the Kaiser Wilhelm Society in the National Socialist Era“, **2005**.
- [4] a) W. Heisenberg, K. Wirtz in *FIAT Review of German Science 1939–1945: Nuclear Physics and Cosmic Rays. Part II* (Hrsg.: W. Bothe, S. Flügge), Dieterichsche Verlagsbuchhandlung, Wiesbaden, **1948**, S. 143–165; b) K. Wirtz, *Phys. Bl.* **1947**, *3*, 371–379; c) *Atom-Museum Haigerloch Geschichte deutscher Atomforschung*, Stadtverwaltung Haigerloch, **1999**.
- [5] A. Stegmann, A. Habekost, *Nachr. Chem.* **2014**, *62*, 137–141.
- [6] D. E. Becker, H. W. Zeising in *Proceedings of the IRPA Regional Congress on Radiation Protection in Central Europe*, Budapest, Ungarn, **1999**.
- [7] a) K. Mayer, M. Wallenius, I. Ray, *Analyst* **2005**, *130*, 433–441; b) K. J. Moody, I. D. Hutcheon, P. M. Grant, *Nuclear Forensic Analysis*, CRC, Boca Raton, FL, **2005**; c) J. M. Schwantes, M. Douglas, S. E. Bonde, J. D. Briggs, O. T. Farmer, L. R. Green-

- wood, E. A. Lepel, C. R. Orton, J. F. Wacker, A. T. Luksic, *Anal. Chem.* **2009**, *81*, 1297–1306; d) K. Mayer, M. Wallenius, Z. Varga, J. Horta-Domenech, K. Lützenkirchen, A. Nicholl, S. Millet, G. Rasmussen, T. Wiss, H. Thiele in *INMM 50th Annual Meeting*, Tucson, Arizona, USA, **2009**; e) K. Mayer, M. Wallenius, K. Lützenkirchen, J. Galy, Z. Varga, N. Erdmann, R. Buda, J. V. Kratz, N. Trautmann, K. Fifield, *J. Phys. Conf. Ser.* **2011**, *312*, 0; f) K. Mayer, M. Wallenius, Z. Varga, *Chem. Rev.* **2013**, *113*, 884–900; g) K. Mayer, *Nature* **2013**, *503*, 461–462.
- [8] a) Z. Varga, M. Wallenius, K. Mayer, E. Keegan, S. Millet, *Anal. Chem.* **2009**, *81*, 8327–8334; b) Z. Varga, R. Katona, Z. Stefanka, M. Wallenius, K. Mayer, A. Nicholl, *Talanta* **2009**, *80*, 1744–1749.
- [9] S. Richter, S. A. Goldberg, *Int. J. Mass Spectrom.* **2003**, *229*, 181–197.
- [10] a) P. Steier, M. Bichler, L. Keith Fifield, R. Golser, W. Kutschera, A. Priller, F. Quinto, S. Richter, M. Srnec, P. Terrasi, L. Wacker, A. Wallner, G. Wallner, K. M. Wilcken, E. Maria Wild, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B* **2008**, *266*, 2246–2250; b) K. M. Wilcken, L. K. Fifield, T. T. Barrows, S. G. Tims, L. G. Gladis, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B* **2008**, *266*, 3614–3624.
- [11] M. Wallenius, A. Morgenstern, C. Apostolidis, K. Mayer, *Anal. Bioanal. Chem.* **2002**, *374*, 379–384.
- [12] C. Grüning, G. Huber, P. Klopp, J. V. Kratz, P. Kunz, G. Passler, N. Trautmann, A. Waldek, K. Wendt, *Int. J. Mass Spectrom.* **2004**, *235*, 171–178.
- [13] G. A. Brennecke, L. E. Borg, I. D. Hutcheon, M. A. Sharp, A. D. Anbar, *Earth Planet. Sci. Lett.* **2010**, *291*, 228–233.
- [14] a) P. Harteck, *Brief an Abraham Esau*, 15. Dezember 1943 (zum Stand der  $U^{235}$ -Anreicherung in Zentrifugen), <http://www.deutsches-museum.de/de/archiv/archiv-online/geheimdokumente/forschungszentren/hamburg/brief-harteck-an-esau/>, Zugriff am 12. August 2015; b) J. B. Beams, *Report on the use of the centrifuge method for the concentration of  $U^{235}$  by the Germans*, April 9, 1946, <http://www.deutsches-museum.de/archiv/archiv-online/geheimdokumente/beurteilung/beams-report/>, Zugriff am 12. August 2015.
- [15] a) H. Gerstenberger, *Earth Planet. Sci. Lett.* **1989**, *93*, 65–75; b) J. Bendl, K. Vokurka, B. Sundvoll, *Miner. Petrol.* **1993**, *48*, 35–45.
- [16] A. Eglinger, A. S. André-Mayer, O. Vanderhaeghe, J. Mercadier, M. Cuney, S. Decrée, J. L. Feybesse, J. P. Milesi, *Ore Geol. Rev.* **2013**, *54*, 197–213.
- [17] M. Srnec, K. Mayer, E. Hrncsek, M. Wallenius, Z. Varga, P. Steier, G. Wallner, *Radiochim. Acta* **2010**, *99*, 335–339.
- [18] D. Berkovits, H. Feldstein, S. Ghelberg, A. Hershkowitz, E. Navon, M. Paul, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B* **2000**, *172*, 372–376.

Eingegangen am 29. Mai 2015

Online veröffentlicht am 7. September 2015