

**256. E. H. Riesenfeld und W. Haase: Bemerkungen zu den Untersuchungen von Miethe, Stammreich und Nagaoka über die Umwandlung von Quecksilber in Gold.**

(Vorgetragen in der Sitzung am 10. Mai 1926 von E. H. Riesenfeld; eingegangen am 18. Mai 1926.)

Erinnert man sich daran, daß das Wort „Chemia“ oder „Chymia“ ursprünglich die Kunst bedeutete, Gold und Silber synthetisch darzustellen, so könnte man es als ein Besinnen auf die eigentlichen Aufgaben unserer Wissenschaft bezeichnen, wenn die Frage nach der Synthese dieser Elemente durch die Untersuchungen von Miethe und Stammreich und von Nagaoka wieder in den Vordergrund wissenschaftlicher Diskussion gerückt wurde. Diese Frage hat in der Tat, ganz abgesehen von ihrer praktischen Bedeutung, ein hervorragendes, theoretisches Interesse, heute noch mehr als zur Zeit der Alchimisten. Denn wir besitzen heute ganz ins Einzelne gehende Vorstellungen vom Aufbau der Atome, und nach diesen erscheint die Umwandlung von Quecksilber in Gold, wie sie die genannten Forscher beobachtet haben wollen, unmöglich. Denn nach deren Angaben sollen sich in verhältnismäßig kurzer Zeit bei schwacher elektrischer Beeinflussung so große Mengen Gold gebildet haben, daß sie durch Wägung leicht nachweisbar sind, und es soll das aurum commune, also ein dem natürlichen Golde gleiches Isotopengemisch vom Atomgewicht 197.2, entstanden sein. Eine solche Transmutation wäre weder mit dem freiwilligen Zerfall der Radio-Elemente, noch mit der Atom-Zertrümmerung durch  $\alpha$ -Partikelchen auf eine Stufe zu stellen, sondern etwas ganz Neuartiges. Denn die beim Atom-Zerfall gleichzeitig frei werdende Energie im ersten Falle und die zur Atom-Zertrümmerung aufzuwendende Energie im zweiten Falle übertrifft die elektrischen Kräfte, welche zur Quecksilber-Gold-Transmutation bereits ausreichen sollen, um viele Zehner-Potenzen. Die Richtigkeit dieser Atom-Umwandlung vorausgesetzt, müßten wir daher eine der Grundlagen unserer Wissenschaft, nämlich unsere heutigen Anschauungen vom Bau und der Stabilität der Atome, revidieren.

Da in den ersten Veröffentlichungen Miethes Arbeitsvorschriften, die zu einer quantitativ vorausberechenbaren Umwandlung führen, nicht gegeben wurden, und da ferner die Mengen Gold, die aus verhältnismäßig großen Quecksilbermengen dargestellt wurden, zunächst klein waren, so lag die Möglichkeit vor, daß das Gold entweder aus dem zu diesen Versuchen verwandten Quecksilber oder aus der Apparatur stammte. Wir beschränkten uns darauf, die erste Möglichkeit nachzuprüfen, und fanden, daß alles von uns untersuchte, sogenannte reine Quecksilber goldhaltig war. Es gibt übrigens, wie Sheldon, Estey und Maily<sup>1)</sup> inzwischen festgestellt haben, auch goldfreies Quecksilber, aber nur in vereinzelten Fundstellen. Destilliert man solches goldhaltiges Quecksilber mit genügend großer Destillations-Geschwindigkeit, also z. B. mit einer Geschwindigkeit von 10–30 g pro Stunde und Quadratcentimeter wirksamer Oberfläche, so destilliert ein Teil des Goldes mit dem Quecksilber über. Die Reproduzierbarkeit dieser Ergebnisse bei gleichbleibenden Bedingungen — also Dampfdruck, Temperatur und Destillations-Geschwindigkeit — unabhängig von der Gestaltung der Apparatur beweist, daß es sich hierbei um eine Destillation und nicht um ein Über-

<sup>1)</sup> siehe das Referat in den Naturwissenschaften 14, 50 [1925].

spritzen handelt. Durch gewöhnliche Destillation lassen sich also Gold und Quecksilber nicht hinreichend voneinander trennen.

Ändert man unter sonst gleichen Verhältnissen die Destillations-Geschwindigkeit, so verringert sich die mit dem Quecksilber übergehende Goldmenge um so mehr, je kleiner die Destillations-Geschwindigkeit wird. Und ebenso nimmt bei gleicher Destillations-Geschwindigkeit die übergehende Goldmenge um so mehr ab, je kleiner der Dampfdruck ist, unter welchem die Destillation erfolgt.

Diese Erscheinung erklärt sich folgendermaßen: Bei schneller Destillation eines sehr verdünnten Gold-Amalgams gehen zusammen mit den Quecksilber-Atomen auch Gold-Atome oder Moleküle einer leicht flüchtigen Gold-Quecksilber-Verbindung in den Gasraum mit über. Das Verhältnis von Gold- zu Quecksilber-Atomen im Gasraum unmittelbar über der Flüssigkeits-Oberfläche bleibt zwar stets viel kleiner als das gleiche Verhältnis in der Flüssigkeit, ist aber doch um viele Zehner-Potenzen größer als dem Dampfdruck des kompakten Goldes bei gleicher Temperatur entspricht. Diese Goldteilchen werden bei großer Destillations-Geschwindigkeit von dem Quecksilber-Dampfstrahl mit fortgetragen und können daher nicht mehr zur Flüssigkeit zurücksinken, wie sie dies bei kleiner Destillations-Geschwindigkeit tun.

Daß diese Auffassung richtig sein kann, soll an folgendem Zahlenbeispiel gezeigt werden:

Destilliert man bei einer Temperatur von  $100^{\circ}$ , also einem Dampfdruck von 0.27 mm Hg, aus einer Oberfläche von 50 qcm 600 g Hg pro Stunde über — eine Destillations-Geschwindigkeit, die praktisch leicht zu erreichen ist —, so hat der Dampfstrahl unmittelbar über der Oberfläche eine lineare translatorische Geschwindigkeit von 1.43 m pro Sekunde. Die Verdampfungs-Geschwindigkeit des Quecksilbers beträgt hierbei  $3.36 \times 10^{-3} \frac{\text{g}}{\text{sec/qcm}}$ . Diejenige Verdampfungs-Geschwindigkeit, die man erhält, wenn alle aus der Flüssigkeit in den Dampfraum übergehenden Atome fortgeführt werden, und keines derselben in die Flüssigkeit zurücksinkt, nennt man maximale Verdampfungs-Geschwindigkeit. Für diese haben Knudsen, Bennewitz und Volmer eine theoretisch abgeleitete und gerade für den Fall des Quecksilbers auf das Exakteste experimentell bestätigte Formel aufgestellt. Nach dieser beträgt in dem hier angeführten Beispiel die maximale Verdampfungs-Geschwindigkeit  $11.9 \times 10^{-3} \frac{\text{g}}{\text{sec/qcm}}$ . Die experimentell gefundene Verdampfungs-Geschwindigkeit des Quecksilbers ist also bei diesem Versuche 36% der maximalen. Rund  $\frac{1}{3}$  aller Moleküle sind daher unter diesen Bedingungen der Molekularbewegung entzogen und werden durch den saugenden Dampfstrahl senkrecht von der Flüssigkeit fortbewegt. Hierbei geht Gold, wie wir gefunden haben, in einer Konzentration von etwa  $1 \times 10^{-7}$  g pro Gramm überdestillierendes Quecksilber mit über. Nehmen wir an, daß  $\frac{1}{100}$  der Quecksilber-Oberfläche mit fein verteiltem Gold bedeckt ist, und daß alle vom Gold in den Dampfraum übergehenden Moleküle durch den Quecksilber-Strahl mit fortgeführt werden, so würde der Quasi-Dampfdruck des Goldes nach der soeben angeführten, von Knudsen, Bennewitz und Volmer herrührenden Formel  $7.87 \times 10^{-9}$  mm Hg betragen. Es ist dies ein Wert, der an sich durchaus möglich erscheint.

Die Tatsache, daß Edelmetalle bei der Destillation des Quecksilbers in einem größeren Verhältnis mit übergehen, als man es nach ihren Dampfdrücken erwarten sollte, daß aber dieses Übergehen in einer deutlichen Beziehung zum Dampfdruck steht, darauf hat schon Hullet<sup>2)</sup> hingewiesen. Er fand diese Gesetzmäßigkeit bei Silber, Gold und Platin. In der folgenden Tabelle sind die mit je 1 g Quecksilber übergehenden Anzahl Gramm des Edelmetalls und die Temperaturen, bei welchen der Dampfdruck des betreffenden Metalls 760 mm Hg beträgt, zusammengestellt. Eine Erklärung für diese Erscheinung konnte Hullet seinerzeit noch nicht geben.

Metall	Konz. im Dest.	Temp. ° für p = 760 mm Hg
Ag	$3 \times 10^{-7}$	1950°
Au	$2.7 \times 10^{-8}$	2100°
Pt	ca. $1 \times 10^{-9}$	ca. 3800°.

Wir glauben, in obiger Betrachtung eine Erklärung für diese Erscheinung gefunden zu haben, und werden die Richtigkeit dieser Arbeits-Hypothese durch Untersuchung der Abhängigkeit des Mitüberdestillierens von Dampfdruck, Temperatur, Konzentration und Verdampfungs-Geschwindigkeit auch an anderen Systemen prüfen.

Anfangs dieses Jahres gab endlich Miethe<sup>3)</sup> eine Versuchsordnung bekannt, in welcher die Umwandlung von Quecksilber in Gold in vorausberechenbarer Weise erfolgen sollte. Dieselbe ist dem Boasschen rotierenden Quecksilber-Strahlunterbrecher nachgebildet. Miethe bestimmte in dieser Apparatur das elektrische Äquivalent der Quecksilber-Gold-Umwandlung, d. h. die Anzahl Amp.-Stunden, die erforderlich ist, um 1 Gramm-Atom in Gold zu verwandeln. Dasselbe beträgt nach Miethe 49 Millionen Amp.-Stdn. Mit einem einfachen Quecksilber-Unterbrecher sollte man also mit Leichtigkeit und ohne besondere Unkosten mehrere Milligramm Au darstellen können. Die Stromkosten würden bei einem Preise von 16 Pfg. pro kWStde. 44 Mark für je 1 mg Au betragen. Führt man den Versuch in dieser Weise aus und sorgt dafür, daß Goldmengen von der Größenordnung von 1 mg erhalten werden sollten, so braucht man in der Wahl der Apparatur nicht mehr besonders vorsichtig zu sein, da dann die geringen Goldmengen, welche aus den verwandten Materialien stammen, das Endergebnis nicht mehr trüben können.

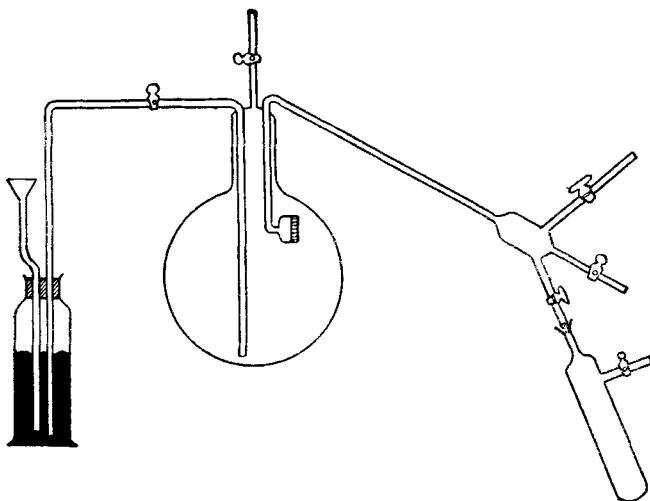
Wir haben zu unseren Versuchen einen käuflichen Boasschen Quecksilber-Strahlunterbrecher benutzt und, mit demselben Dauerversuche angestellt, d. h. denselben so lange in Betrieb gelassen, bis, unter Zugrundelegung des Mietheschen Äquivalentes, Goldmengen von etwa 0.4 mg hätten entstanden sein müssen. Hierzu war der Unterbrecher bei 5 Amp. Belastung jeweils 200 Stdn. = 8 Tage ununterbrochen im Betriebe. Der Unterbrecher wurde einmal so geschaltet, daß der Quecksilber-Pol positiv war, ein andermal so, daß er negativ war; dazwischen wurde jeweils ein Blindversuch gemacht, bei welchem das Quecksilber also ohne Strom-Einschaltung die gleiche Zeit im Unterbrecher gerührt wurde. Zu jedem Versuche dienten etwa 4 kg goldfreies Quecksilber.

Die Untersuchung des Quecksilbers erfolgte bei den letzten Analysen in folgender Weise: Durch Destillation mit einer Destillations-Geschwindigkeit von weniger als 1 g Hg pro Stunde und Quadratcentimeter wirksamer Oberfläche, bei welcher also

<sup>2)</sup> Phys. Review **33**, 309 [1911].

<sup>3)</sup> Z. a. Ch. **150**, 353 [1926].

keine nachweisbaren Mengen Gold mit dem Quecksilber übergehen, wurden mit der in beistehender Figur abgebildeten Apparatur die angewandte Quecksilber-Menge bis auf 100—200 g eingeengt. Der 100—200 g betragende Rückstand wurde in der schon früher beschriebenen Weise mit halogenfreier Salpetersäure behandelt, bis eine Quecksilber-Menge von etwa 1—2 g zurückblieb. Dieses kleine Quecksilber-Kügelchen wurde dann in einen Quarztrichter gebracht und durch weitere Zugabe von Salpetersäure vollkommen gelöst. Zum Schluß blieb in vielen Fällen ein kleines Aggregat von Goldkryställchen zurück, dessen Menge durch direkte Wägung im Quarztrichter bestimmt wurde<sup>4)</sup>.



Figur 1

Nur beim ersten Versuch, bei welchem die Hauptmenge des Goldes aus der Apparatur herausgelöst wurde, wurde eine Gold-Konzentration in der Größenordnung von  $10^{-7}$  g gefunden. Die drei folgenden Versuche ergaben Goldmengen von der Größenordnung  $10^{-8}$  g bis  $10^{-9}$  g. Wäre eine Umwandlung von Quecksilber in Gold, entsprechend dem von Miethe angegebenen Äquivalent erfolgt, so hätte die Gold-Konzentration bei allen Versuchen etwa  $1 \cdot 10^{-7}$  g betragen müssen.

Abgesehen von dem ersten Versuch, bei welchem die Hauptmenge des Goldes aus den Eisenwandungen der Apparatur, den Elektroden usw. herausgelöst wurde, erhielten wir also nur 10% und weniger als 10% der Goldmenge, die sich nach dem Mietheschen Äquivalent bei diesen Versuchen hätte bilden müssen. Die gefundene Goldmenge war unabhängig davon, ob Strom durch den Unterbrecher ging oder nicht, und erklärt sich zwanglos aus dem Gold-Gehalt der Materialien, aus denen der benutzte Quecksilber-Unterbrecher angefertigt war.

Damit ist erwiesen, daß auch die neuen Versuche von Miethe nicht reproduzierbar sind. Mehr wollten wir, und kann man auch nicht beweisen. Bei der prinzipiellen Bedeutung der Frage, ob Elemente, die nicht freiwillig zerfallen, schon durch so geringe Energie-Mengen, wie sie Miethe und Nagaoaka zu ihren Versuchen benutzt haben, in chemisch nachweisbarer Menge

<sup>4)</sup> Nähere Angaben über diese Methode siehe B. 58, 2829 [1925].

in einander verwandelbar sind, schien es uns berechtigt, auch dieses negative Ergebnis hier mitzuteilen. Eine eingehende Beschreibung unserer einzelnen Versuche wird demnächst in der Zeitschrift für anorgan. und allgemeine Chemie erscheinen.

Zum Schluß sei es uns gestattet, Hrn. Dr. Jaenicke, der einen Teil der Analysen, auf die wir uns stützen, nach der in Gemeinschaft mit Haber und Matthias erdachten Methode ausgeführt hat, und Hrn. Dr. Jores, der uns bei unseren Versuchen geholfen hat, unseren besten Dank auszusprechen.

**257. Erich Tiede, Arthur Schleede und Frieda Goldschmidt:  
Zur Frage der Bildung von Gold aus Quecksilber unter Berücksichtigung  
der Versuche von Miethe, Stammreich und Nagaoka.**

(Vorgetragen in der Sitzung am 10. Mai 1926 von Hrn. E. Tiede; eingegangen am 4. Juni 1926.)

In der vorliegenden Arbeit haben wir die Angaben von Miethe, Stammreich<sup>1)</sup> und Nagaoka<sup>2)</sup> über die Umwandlung von Quecksilber in Gold nachgeprüft und sind zu einem negativen Ergebnis gelangt. Eine Transmutation halten auch wir an sich für möglich. Wir sahen aber unsere Aufgabe nicht darin, die nach unserer Meinung vielleicht besten Bedingungen dafür aufzusuchen, sondern die von den oben genannten Forschern beschriebenen Versuche möglichst genau nachzumachen. Naheliegende Verbesserungen und Erweiterungen haben wir natürlich vorgenommen, um nach Möglichkeit die Ursachen unserer völlig abweichenden Resultate aufzudecken.

**Die Reinigung des Ausgangs-Quecksilbers und die Bestimmung  
des Goldes.**

Miethe und Stammreich haben nach ihrer eigenen Angabe<sup>3)</sup> bei ihren ersten Versuchen das Ausgangs-Quecksilber zweimal im Vakuum der Wasserstrahl-Pumpe destilliert, die Edelmetall-Freiheit der Rückstände festgestellt und das destillierte Quecksilber der elektrischen Behandlung unterworfen. Später haben sie dann die Destillationen vor der elektrischen Behandlung des Quecksilbers vermehrt und gelegentlich ein bis zu 15-mal in ihren Apparaten destilliertes Quecksilber verwendet<sup>4)</sup>. Daß häufig schon nach zweimaliger Destillation Gold-Freiheit des Quecksilbers vorlag, führen sie auf ihr sehr goldarmes Ausgangsmaterial, besonders aber auf ihre günstige Destillations-Apparatur zurück. Miethe und Stammreich gehen im allgemeinen von 1 kg Quecksilber aus, das zunächst auf etwa 2 % eingeeengt wird. Hierbei benützen sie einen Destillations-Apparat mit Wasserkühlung<sup>5)</sup>. Beim Vakuum der Wasserstrahl-Pumpe betrug die Ofen-Temperatur etwa

<sup>1)</sup> Miethe, Stammreich, Naturwiss. **12**, 597, 744, 1211 [1924], **13**, 635 [1925]; Z. a. Ch. **140**, 368, **148**, 93, **149**, 263 [1925], **150**, 350 [1926]; Z. f. techn. Phys. **6**, 74 [1925]; Phys. Z. **26**, 842 [1925]; B. **59**, 359 [1926]; Franz. Patent 598140 [1925].

<sup>2)</sup> Nagaoka, Naturwiss. **13**, 684 [1925], **14**, 85 [1926]; Nature **116**, 95 [1925]; Journ. de phys. et le Radium **6**, 209 [1925]; Soc. Franç. de Phys., Rev. gén. des Sciences pures et appl. **36**, 59 [1925].

<sup>3)</sup> Z. f. techn. Phys. **6**, 76 [1925].

<sup>4)</sup> Phys. Z. **26**, 844 [1925]; B. **59**, 360 [1926].

<sup>5)</sup> Z. a. Ch. **149**, 268 (Fig. 1) [1925]. Genaue Angaben über die benutzten Destillationsapparate fehlen in den Veröffentlichungen von Miethe und Stammreich völlig.