



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 10 2004 027 623 A1** 2005.12.22

(12)

Offenlegungsschrift

(21) Aktenzeichen: **10 2004 027 623.4**

(22) Anmeldetag: **05.06.2004**

(43) Offenlegungstag: **22.12.2005**

(51) Int Cl.7: **C25B 1/28**
C25B 11/04, C01B 15/00

(71) Anmelder:

**Degussa Initiators GmbH & Co. KG, 82049 Pullach,
DE**

(74) Vertreter:

Weickmann & Weickmann, 81679 München

(72) Erfinder:

**Thiele, Wolfgang, Dr., 04838 Eilenburg, DE;
Kramer, Hans-Jürgen, 06844 Dessau, DE; Förster,
Hans-Jürgen, Dr., 06749 Bitterfeld, DE**

(56) Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht zu
ziehende Druckschriften:

DE 199 48 184 C2

DE 100 19 683 A1

DE 200 05 681 U1

FR 27 90 268 B1

EP 12 54 972 A1

EP 12 29 149 A1

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Rechercheantrag gemäß § 43 Abs. 1 Satz 1 PatG ist gestellt.

(54) Bezeichnung: **Verfahren zur Herstellung von Peroxodisulfaten in wässriger Lösung**

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung hat ein rationelles Verfahren zur Herstellung von Peroxodischwefelsäure und/oder deren Salzen durch Elektrolyse von Schwefelsäure und/oder Metallsulfate enthaltenden wässrigen Lösungen unter Verwendung diamantbeschichteter Anoden zum Ziel.

Das neue Verfahren beruht auf der Verwendung echter bipolarer, nur einseitig mit dotiertem Diamant beschichteten Siliziumelektroden, bei denen die unbeschichteten Rückseiten direkt als Kathoden wirken. Da der Elektrolysestrom auf kurzem Weg nur von der einen Seite der bipolaren Elektrode auf die andere fließt und durch die kathodische Belastung der Siliziumoberfläche die Bildung von schlecht leitenden Oxidschichten sicher verhindert wird, sind sehr niedrige Zellspannungen unter 5 V und damit günstige spezifische Elektroenergieverbräuche unter 2 kWh/kg erreichbar. Bevorzugt können diese bipolaren Siliziumelektroden in ungeteilten Elektrolysezellen, aber auch in durch Inonen-austauschermembranen oder poröse Diaphragmen geteilten Elektrolysezellen eingesetzt werden. Überraschend ergaben sich auch bei den peroxodisulfathaltigen Elektrolytlösungen in ungeteilten Zellen sehr niedrige Korrosionsraten auf der Kathodenseite und damit hohe Standzeiten dieser bipolaren Elektroden. Als Randanoden mit Stromzuführung können vorteilhaft diamantbeschichtete Elektroden aus einem Ventilmaterial, z. B. Niob, verwendet werden. Mit ungeteilten Versuchszellen wurden spezifische Elektroenergieverbräuche unter 2 kWh/kg noch bei ...

Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung bzw. Regenerierung von Peroxodischwefelsäure und ihren Salzen durch Elektrolyse einer Schwefelsäure und/oder Metallsulfate enthaltenden wässrigen Lösung. Dabei kommen als Metallsulfate vorzugsweise Alkalisulfate oder Ammoniumsulfat in Betracht. Aber auch Mischungen aus verschiedenen Metallsulfaten z. B. auch unter Beteiligung von Magnesiumsulfat, Zinksulfat oder sogar Nickel- bzw. Eisensulfat können eingesetzt werden, vorzugsweise bei der Regenerierung von Ätz- und Beizlösungen.

Stand der Technik

[0002] Es ist bekannt, dass für die Herstellung von Peroxodisulfaten der Alkalimetalle und des Ammoniums diamantbeschichtete Elektroden aus Ventilmetallen, vorzugsweise aus Niob, oder aus keramischen Materialien, vorzugsweise aus Silizium, vorteilhaft eingesetzt werden können [DE 199 48 184.9, DE 100 19 683]. Die Diamantschicht wird dabei durch Dotierung mit einem drei- oder fünfwertigen Element, vorzugsweise mit Bor, leitfähig gemacht. Im Vergleich zu den zur Peroxodisulfatherstellung bisher ausschließlich eingesetzten Anoden aus glattem Platin ergeben sich Vorteile dadurch, dass es infolge des an der Diamantoberfläche erreichbaren hohen Potenzials nicht erforderlich ist, dem Elektrolyten zur Erreichung ausreichend hoher Stromausbeuten potenzialerhöhende Zusätze zuzusetzen, wie es bei Platinanoden unverzichtbar ist. Bei der bevorzugten Verwendung von Thiocyanaten als Polarisatoren kommt es aber zu cyanidbelasteten Anodengasen, die aufwändige Gasreinigungsmaßnahmen erforderlich machen. Bei Verwendung diamantbeschichteter Anoden kann darauf völlig verzichtet werden.

[0003] Ein weiterer Vorteil der diamantbeschichteten Anoden bei der Peroxodisulfatherstellung besteht darin, dass auch bei niedrigerem Sulfatgehalt im Anolyten noch deutlich höhere Stromausbeuten erreicht werden können als bei Verwendung von Platinanoden.

[0004] Trotz der sehr guten Beständigkeit besonders der diamantbeschichteten Siliziumelektroden ergaben sich bei ihrem Einsatz eine Reihe von Nachteilen. So bestand das Problem einer geeigneten Stromzuführung. Infolge der relativ niedrigen elektrischen Leitfähigkeit des Silizium-Grundkörpers musste die Kontaktierung über die gesamte Fläche der Elektrodenrückseite vorgenommen werden, so dass der Stromtransport lediglich von der kontaktierten Rückseite über die geringe Stärke der Siliziumelektrode von 1 bis 2 mm zur Diamantbeschichtung zu fließen braucht. Dieses Problem konnte durch Aufkleben der dazu vorzugsweise metallisierten Rückseiten der Siliziumplatten auf eine gut leitfähige metallische Unterlage mittels eines elektrisch leitenden Klebstoffs zwar prinzipiell gelöst werden, jedoch ist der dabei zu betreibende Aufwand relativ groß.

[0005] Ein weiterer Nachteil der diamantbeschichteten Siliziumelektroden besteht in ihren begrenzten Abmessungen von derzeit maximal 200 × 250 mm. Um trotzdem großflächige Anoden zum Einsatz in technischen Elektrolysezellen bereitstellen zu können, wurde in der EP 1 229 149 vorgeschlagen, eine größere Anzahl solcher Silizium-Diamant-Elektroden mittels elektrisch leitendem Kleber auf eine Metallgrundplatte, z. B. aus einem Ventilmetall, aufzukleben und die Kanten durch ein korrosionsbeständiges Harz, z. B. Epoxidharz zu versiegeln. Auch hierfür ist der zu betreibende Aufwand für den Leitkleber, z. B. aus Epoxidharz mit Silberpartikeln, und für die vollständige Beseitigung der Oxidschichten auf den zu verbindenden Flächen relativ hoch. Außerdem hat sich eine solche Elektrodenkonstruktion für die Herstellung von Peroxodisulfat als nicht ausreichend korrosionsbeständig erwiesen, so dass damit nur geringe Standzeiten von meist unter einem Jahr erreicht werden konnten.

[0006] Eine andere Möglichkeit, Elektrolysezellen mit ausreichend großer Stromkapazität aufzubauen, besteht in der Reihenschaltung einer größeren Anzahl von bipolaren Silizium-Diamantelektroden. In der FR 99 02482 wird eine solche bipolare Elektrolysezelle vorgeschlagen, bei der die bipolaren Elektroden aus einem keramischen Substrat bestehen, welches mit einem Diamant-Film vollständig umhüllt ist. Allerdings wird diese Zelle nicht speziell für die Herstellung von Peroxodisulfaten vorgeschlagen, sondern für Anwendungen zum Schadstoffabbau bzw. zur Wasserdesinfektion.

[0007] Im EP 1 254 972 wird eine auch für unterschiedliche Anwendungen geeignete Elektrolysezellenkonstruktion vorgeschlagen, die monopolar oder bipolar, als ungeteilte oder geteilte Zelle ausgeführt werden kann. Bei der bipolaren Ausführung werden wieder ausschließlich beidseitig diamantbeschichtete Siliziumscheibenelektroden eingesetzt. Für die Herstellung von Peroxodisulfaten sind diese Zellen mit beidseitig diamantbeschichteten Siliziumelektroden und der relativ aufwändigen Zellenkonstruktion lediglich für kleine Persulfat-Durchsatzleistungen effektiv einsetzbar. Will man durch eine größere Anzahl von bipolaren Einzelzellen die

Durchsatzleistung bis in technisch relevante Bereiche erhöhen, kommt es bei dieser Konstruktion zu Ausbeuteminderungen durch die mit der Gesamtspannung stark ansteigenden Verlustströme in den Zu- und Abführungsleitungen.

[0008] Die Erfindung hat ein Verfahren zur Herstellung bzw. Regenerierung von Peroxodisulfaten in geteilten und ungeteilten Elektrolysezellen mit diamantbeschichteten Siliziumelektroden zum Gegenstand, wobei die dargestellten Nachteile der bisherigen Verfahren und Elektrolysezellen in überraschend einfacher Weise vermieden werden. Es wurde gefunden, dass sich Peroxodisulfate in ungeteilten oder geteilten Elektrolysezellen in einfacher Weise unter Verwendung von bipolaren, einseitig mit Diamant beschichteten Siliziumelektroden herstellen lassen, wobei die unbeschichteten Siliziumrückseiten direkt als Kathoden wirken.

[0009] Es wurde weiter gefunden, dass sich mit solchen bipolaren Elektroden nicht nur hohe Persulfat-Bildungsraten erreichen lassen, sondern dies auch bei geringstmöglichen Zellspannungen und damit niedrigen spezifischen Elektroenergieverbräuchen. Das beruht einerseits auf der Erkenntnis, dass die Silizium-Kathodenoberflächen durch die kathodische Belastung von anfänglich vorhandenen, schlecht leitenden Oxidschichten befreit werden und im Verlauf der Elektrolyse diese weiterhin völlig frei gehalten werden können. Es konnte im Dauerversuch (s. Anwendungsbeispiel 1) nachgewiesen werden, dass sich mit zunehmender Betriebszeit die Zellspannung sogar weiter verringert, während bei den auf eine Metallunterlage aufgeklebten diamantbeschichteten Siliziumelektroden infolge der zunehmenden Korrosion eine umgekehrte Tendenz zu beobachten ist.

[0010] Ein weiterer Vorteil solcher bipolaren, einseitig diamantbeschichteten Siliziumelektroden besteht in der geringeren katalytischen Aktivität der Siliziumrückseite im Vergleich mit einer metallisierten Elektrodenrückseite, z. B. aus Platin oder Edelstahl. Es wurde gefunden, dass sich dadurch geringere Reduktionsverluste an Peroxodisulfat ergeben, wenn in einer ungeteilten Elektrolysezelle elektrolysiert wird. Dies führt bei ungeteilten Zellen dazu, dass der Anstieg der Peroxodisulfat-Konzentration mit der Elektrolysedauer etwas steiler verläuft und die erreichbare Endkonzentration höher ist als bei Verwendung einer metallisierten Kathode unter sonst gleichen Elektrolysebedingungen.

[0011] Gegenüber den bekannten, beidseitig mit dotiertem Diamant beschichteten bipolaren Elektroden ergeben sich nicht nur Kosteneinsparungen für die Elektroden selbst und für die damit ausgestatteten Elektrolysezellen, sondern auch durch die erreichbaren niedrigeren Elektroenergieverbräuche.

[0012] Damit sind die erfindungsgemäß einzusetzenden einseitig diamantbeschichteten bipolaren Siliziumelektroden insbesondere geeignet für relativ einfach aufgebaute ungeteilte Elektrolysezellen, wie sie z. B. in der DE G 200 05 681.6 für die Desinfektion von Wässern beschrieben wird. Dabei hat es sich für den Stromeintrag als vorteilhaft erwiesen, wenn nach weiteren Merkmalen der Erfindung die monopolaren Randanoden aus einem diamantbeschichtetem Ventilmaterial, z. B. aus Niob und die monopolaren Randkathoden aus einem geeigneten gut leitfähigem Werkstoff wie Hastelloy, hochlegiertem Edelstahl, Platin oder imprägniertem Graphit bestehen. Auch eine Silizium-Randkathode mit metallisierter Rückseite, kontaktiert mit einer Stromzuführungsplatte aus einem gut leitfähigen Material, z. B. Kupfer, ist wegen der guten Dauerbeständigkeit in ungeteilten Zellen vorteilhaft einsetzbar. Insbesondere bei Einsatz von Randeletroden aus metallischen Werkstoffen ist der Stromeintrag wegen der guten Leitfähigkeit in einfacher Weise und ohne größere Spannungsabfälle optimal realisierbar.

[0013] In einer Elektrolysezelle können auch mehrere aus bipolaren Elektroden und Randeletroden mit Stromzuführung bestehende Elektrodenstapel elektrisch parallel geschaltet werden. Damit ist es möglich, größere Stromkapazitäten in einer Elektrolysezelle unterzubringen, ohne dass eine unvertretbar hohe Gesamtspannung erforderlich ist. Damit kann die Spannung auch optimal an die verfügbare Gleichrichterspannung angepasst werden. Außerdem können dadurch die Kurzschlussströme in den gemeinsamen Zu- und Abführungsleitungen für die Elektrolytlösungen minimiert werden, was in bekannter Weise durch die Anordnung von zusätzlichen Widerstandsstrecken in diesen Leitungen unterstützt werden kann.

[0014] Erfindungsgemäß aufgebaute ungeteilte Bipolarzellen sind immer dann besonders vorteilhaft einsetzbar, wenn die Peroxodisulfatkonzentration für den betreffenden Anwendungsfall nicht allzu hoch sein muss, wie z. B. für den oxidativen Schadstoffabbau in Prozesslösungen und Abwässern. Wie aus dem Anwendungsbeispiel 2 hervorgeht, können in einer ungeteilten Zelle mit den erfindungsgemäßen bipolaren Elektroden im Batch-Betrieb Natriumperoxodisulfat-Reaktionslösungen mit einem Gehalt von 50 bis 100 g/l noch mit mit Stromausbeuten zwischen 75 und 50 % und spezifischen Elektroenergieverbräuchen zwischen 1,3 und 1,9 kWh/kg sehr effektiv hergestellt werden.

[0015] Noch bessere Stromausbeuten bzw. die gleichen Ausbeuten bei höheren Peroxodisulfat-Endkonzentrationen lassen sich durch die Abschirmung der Kathode mittels geeigneter, den Stofftransport zur Kathodenoberfläche hemmender Materialien erreichen, wie aus dem Anwendungsbeispiel 3 hervorgeht. Damit können in ungeteilten Zellen noch NaPS-Konzentrationen von 150 bis 200 g/l mit vertretbaren Stromausbeuten um die 50 % in ungeteilten Zellen hergestellt werden, wenn auch mit höheren Zellspannungen.

[0016] Sind noch höhere Endkonzentrationen an Peroxodisulfaten, z. B. im Bereich von 200 bis 400 g/l Natriumperoxodisulfat, erforderlich, dann sind geteilte Elektrolysezellen mit den erfindungsgemäßen bipolaren Siliziumelektroden effizienter einzusetzen. Wie aus dem Anwendungsbeispiel 4 hervorgeht, sind damit Stromausbeuten zwischen 75 und 85 % erreichbar, allerdings mit einem aufwändigeren Zellenaufbau und bei höheren Zellspannungen von etwa 5,5 bis 6 V. Es sind damit aber immer noch vergleichsweise sehr günstige spezifische Elektroenergieverbräuche unter 2,0 kWh/kg erreichbar.

[0017] Überraschend waren die im Dauerversuch mit saurem persulfathaltigem Elektrolyten in ungeteilten Elektrolysezellen festgestellten sehr geringen Abtragsraten an den Siliziumkathode. So wurden bei einem ca. 7monatigen Dauerversuch (s. Anwendungsbeispiel 1) in der ungeteilten Zelle mit einem stationären Natriumperoxodisulfatgehalt von ca. 150 g/l überraschen geringe Abtragsraten von nur 2 bis 3 µm festgestellt. Das war besonders deshalb überraschen, weil unter diesen sehr stark korrosiven Bedingungen selbst an Platinkathoden ein 10 bis 100fach stärkerer Abtrag zu beobachten war. Auch Kathoden aus Graphit oder hochlegierten Edelmetallen erwiesen sich in solchen Peroxodisulfat enthaltenden schwefelsauren Elektrolytlösungen als ungeeignet, da nicht ausreichend korrosionsbeständig.

Ausführungsbeispiel

Anwendungsbeispiele

Beispiel 1:

[0018] Eine analog DE G 200 05 681.6 aufgebaute ungeteilte bipolare Elektrolysezelle enthielt 9 bipolare Siliziumelektroden, einseitig mit ca. 3 µm bordotiertem Diamant beschichtet (durchschnittlich ca. 3.000 ppm Bor). Als Randanode diente eine mit Stromzuführung ausgestattete, einseitig diamantbeschichtete Niobelektrode. Die Randkathode mit Stromzuführung bestand aus Hastelloy. Die bipolaren Elektroden hatten die Abmessung 100 × 33 mm (33 cm²). Der mittlere Abstand der etwa 1 mm starken bipolaren Elektroden wurde durch Abstandshalter auf ca. 2 mm eingestellt. Der Elektrolysestrom wurde auf 16,5 A konstant eingeregelt, einer anodischen und kathodischen Stromdichte von 0,5 A/cm² entsprechend. Die gesamte Stromkapazität der Elektrolysezelle ergab sich daraus mit 10 × 16,5 = 165 A. Als Elektrolyt dienten 2 l einer 300 g/l Natriumsulfat und 200 g/l Schwefelsäure enthaltenden wässrigen Lösung. Sie wurde aus einem Umlaufgefäß mit einer Geschwindigkeit von ca. 600 l/h im Kreislauf über einen Wärmeaustauscher und durch die Zelle gepumpt (Batch-Betrieb). Der Elektrolysebetrieb wurde über 5000 h aufrecht erhalten, wobei lediglich das verdampfte bzw. zersetzte Wasser ergänzt wurde. Im stationären Zustand stellte sich eine Konzentration zwischen 170 und 190 g/l Natriumperoxodisulfat bei einer stationären Temperatur von ca. 35 °C ein. Die Gesamtspannung bei Inbetriebnahme lag bei 50 V. Die mittlere Zellspannung entwickelte sich im Verlauf des Dauerbetriebes wie folgt:

Betriebszeit von	5 h	50 h	500 h	5000 h
mittlere Zellspannung	4,95 V	4,60 V	4,35 V	4,18 V

[0019] Nach 5.000 Betriebsstunden wurden die Elektroden ausgebaut und der Gewichtsverlust bestimmt. Daraus wurde die mittlere Abnahme der Silizium-Elektrodenstärke zu durchschnittlich 3 µm berechnet. Die Dicke der Siliziumkathode nimmt also nur um etwa 10 µm pro Jahr ab.

Beispiel 2:

[0020] Mit der ungeteilten Elektrolysezelle aus Beispiel 1 wurde unter den gleichen Elektrolysebedingungen (Elektrolytzusammensetzung, Stromdichte, Temperatur, Batch-Betrieb) die Abhängigkeit der Stromausbeute von der erreichten Endkonzentration an Natriumperoxodisulfat bestimmt. Es wurden folgende Ergebnisse erhalten:

Endkonzentration an NaPS in g/l	25	50	75	100	125	150
Stromausbeute der NaPS-Bildung in %	84	77	64	50	40	34

[0021] Bei der nach längerer Betriebszeit sich einstellenden günstigsten Zellspannung von etwa 4,2 V ergibt sich für die Endkonzentration von 50 g/l ein spezifischer Elektroenergieverbrauch von 1,23 kWh/kg, für die Endkonzentration von 100 g/l NaPS trotz der auf 50 % abgesunkenen Stromausbeute immer noch von 1,89 kWh/kg.

Beispiel 3:

[0022] Die gleiche ungeteilte Elektrolysezelle der Beispiele 1 und 2 wurde mit einer auf den Kathoden der bipolaren Elektrodenplatten sowie der Randkathode aufliegenden PVC-Gaze ausgerüstet, die durch einen Kunststoffspacer an die Oberfläche angedrückt wurde. Unter den gleichen Elektrolysebedingungen wie im Beispiel 2 wurde wieder elektrolysiert. Es wurden folgende Stromausbeuten, bezogen auf die erreichte NaPS-Endkonzentration, erhalten.

Endkonzentration an NaPS in g/l	50	75	100	125	150	175	200
Stromausbeute der NaPS-Bildung in %	84	77	73	68	61	54	49

[0023] Selbst im Konzentrationsbereich zwischen 100 und 200 g/l werden noch relativ günstige Stromausbeuten erreicht, die im Durchschnitt etwa 20 % höher sind als ohne diese Abschirmung der Kathodenoberflächen. Allerdings lagen die Zellspannungen durch den zusätzlichen Widerstand der Gazeabschirmung um etwa 0,8 V höher. Trotzdem ergab sich z.B. bei 150 g/l NaPS-Endkonzentration immer noch ein sehr günstiger spezifischer Elektroenergieverbrauch von ca. 1,85 kWh/kg.

Beispiel 4:

[0024] Die 9 bipolaren Elektroden sowie die beiden monopolaren Randelektroden der in den Beispielen 1 bis 3 verwendeten ungeteilten Elektrolysezelle wurden in einer geteilten Bipolarzelle eingesetzt. Zur Separierung von Anolyt und Katholyt wurden Kationenaustauschermembranen eingesetzt, beidseitig fixiert durch Anoden- und Kathodenspacer aus Kunststoff. Die durch Dichtrahmen begrenzten Anoden und Kathodenräume hatten eine Stärke von je 2–3 mm. Anolyt und Katholyt wurden in getrennten Kreisläufen unter Zwischenschaltung eines Wärmeaustauschers im Kreislauf gefördert. Als Katholyt diente eine 500 g/l Schwefelsäure. Der Anolyt bestand wieder aus einer 200 g/l Schwefelsäure und 300 g/l Natriumsulfat enthaltenden wässrigen Lösung. Um bei den angestrebten hohen NaPS-Endkonzentrationen eine zu große Verarmung an Natriumsulfat sowohl durch den Verbrauch zur Peroxodisulfatbildung, als auch durch die Überführung von Na⁺-Ionen durch die Kationenaustauschermembran in den Katholyten zu vermeiden, wurden im Anolyten während der Elektrolyse 100 g/l Natriumsulfat nachgelöst (insgesamt also 400 g/l Natriumsulfat). Die anodische und kathodische Stromdichte wurde auf jeweils 0,5 A/cm² eingestellt.

[0025] Unter sonst vergleichbaren Elektrolysebedingungen wurden folgende Stromausbeuten für verschiedene NaPS-Endkonzentrationen erhalten:

bei 200 g/l NaPS-Endkonzentration eine Stromausbeute von 86 %
 bei 300 g/l NaPS-Endkonzentration eine Stromausbeute von 82 %
 bei 400 g/l NaPS-Endkonzentration eine Stromausbeute von 74 %

[0026] Die mittleren Zellspannungen lagen im Bereich von 5,5 und 6 V. Für die Endkonzentration von 400 g/l konnte damit immer noch ein sehr niedriger spezifischer Elektroenergieverbrauch von ca. 1,8 kWh/kg erreicht.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Peroxodischwefelsäure und ihren Salzen durch Elektrolyse wässriger Lösungen von Schwefelsäure und/oder Metallsulfaten an diamantbeschichteten Elektroden ohne Zusatz von Promotoren, gekennzeichnet dadurch, dass bipolare Siliziumelektroden eingesetzt werden, die nur einseitig mit dotiertem Diamant beschichtet sind und deren unbeschichtete Silizium-Rückseite als Kathode dient.

2. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, dass in ungeteilten Elektrolysezellen elektrolysiert wird.

3. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, dass in durch Ionenaustauschermembranen oder porösen Diaphragmen geteilten Elektrolysezellen elektrolysiert wird.

4. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 3, gekennzeichnet dadurch, dass eine diamantbeschichtete An-

ode aus einem Ventilmaterial, z.B. aus Niob, ausgestattet mit einer Stromzuführung, als Randanode eingesetzt wird.

5. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 4, gekennzeichnet dadurch, dass für die mit einer Stromzuführung ausgestatteten Randkathode Edelstahl, Hastelloy, Platin, imprägnierter Graphit oder einseitig metallisiertes Silizium eingesetzt wird.

6. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 5, gekennzeichnet dadurch, dass innerhalb einer Elektrolysezelle mehrere aus bipolaren Elektroden und Randlektroden mit Stromzuführung versehene Elektrodenstapel elektrisch parallel geschaltet sind.

7. Bipolare ungeteilte oder geteilte Elektrolysezellen, ausgestattet mit einseitig diamantbeschichteten bipolaren Elektroden nach den Ansprüchen 1 bis 6.

Es folgt kein Blatt Zeichnungen