

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
16. Februar 2023 (16.02.2023)



(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 2023/016897 A1**

(51) Internationale Patentklassifikation:

C25B 3/07 (2021.01) C25B 9/19 (2021.01)  
C25B 3/20 (2021.01) C25B 9/21 (2021.01)  
C25B 3/25 (2021.01) C25B 13/07 (2021.01)  
C25B 9/01 (2021.01) C25B 15/08 (2006.01)  
C25B 9/13 (2021.01)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2022/071856

(22) Internationales Anmeldedatum:  
03. August 2022 (03.08.2022)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
21191300.9 13. August 2021 (13.08.2021) EP

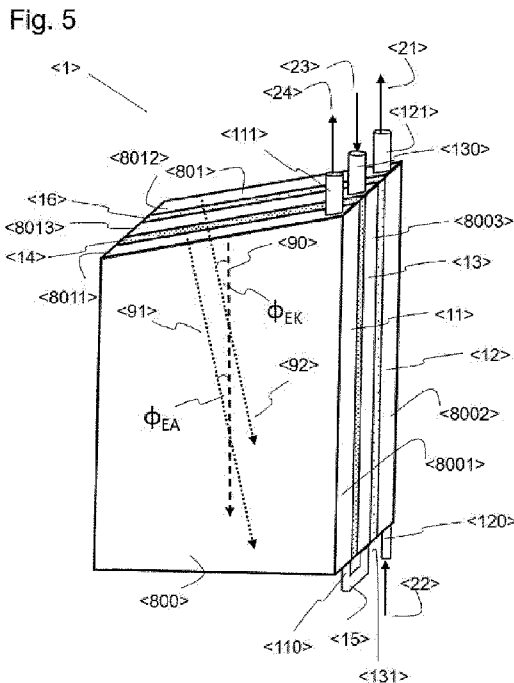
(71) Anmelder: **EVONIK FUNCTIONAL SOLUTIONS GMBH** [DE/DE]; Feldmühlestrasse 3, 53859 Niederkassel (DE).

(72) Erfinder: **HORN, Michael**; Bahnhofstr. 57 a, 53859 Niederkassel (DE). **REINSBERG, Philip Heinrich**; Königswinterer Straße 124, 53227 Bonn (DE). **LÜBKE, Ragnar**; Frankenstrasse 41, 50374 Erfstadt (DE). **FRIGGE, Lorenz**; Auf dem Senkel 34, 53859 Niederkassel (DE). **GERHOFER, Linda**; Klebweg 10, 74653 Künzelsau (DE). **SIEGBERG, Markus**; Espenweg 4, 53859 Niederkassel (DE). **TEUFERT, Rüdiger**; Lülsdorfer Strasse 63, 51143 Köln (DE).

(74) Anwalt: **EVONIK PATENT ASSOCIATION**; c/o Evonik Industries AG, IP Management, Bau 1042A, PB15, Paul-Baumann-Strasse 1, 45772 Marl (DE).

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING ALKALI METAL ALCOHOLATES IN AN ELECTROLYTIC CELL

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON ALKALIMETALLALKOHOLATEN IN EINER ELEKTROLYSEZELLE



(57) Abstract: The present invention relates to a method for producing an alkali metal alcoholate solution  $L_1$  in an electrolytic cell E. The electrolytic cell E comprises at least one cathode chamber  $K_K$ , at least one anode chamber  $K_A$  and at least one central chamber  $K_M$  located therebetween. The interior  $I_{KK}$  of the cathode chamber  $K_K$  is separated from the interior  $I_{KM}$  of the central chamber  $K_M$  by a partition W comprising at least one cation-conducting solid electrolyte ceramic  $F_A$ , for example NaSICON. The interior  $I_{KM}$  of the central chamber  $K_M$  is separated from the interior  $I_{KA}$  of the anode chamber  $K_A$  by a diffusion barrier D, for example a membrane that is selective for cations or anions or a non-ion-specific partition. The part  $O_{EA}$  of the top side  $O_E$  delimiting the interior  $I_{KA}$  of the anode chamber  $K_A$  is a plane, of which the normal  $N_{OEA}$  forms an angle  $0^\circ < \varphi_{EA} < 45^\circ$  to the gravity vector  $V_s$ . Furthermore, the outlet  $A_{KA}$  is then arranged on the top half of  $O_{EA}$ . Alternatively or additionally, preferably additionally, the part  $O_{EK}$  of the top side  $O_E$  delimiting the interior  $I_{KK}$  of the cathode chamber  $K_K$  is a plane, of which the normal  $N_{OEK}$  forms an angle  $0^\circ < \varphi_{EK} < 45^\circ$  to the gravity vector  $V_s$ , and the outlet  $A_{KK}$  is then arranged on the top half of  $O_{EK}$ . This arrangement of the respective top sides and outlets results in the formation of gas cushions in the anode chamber or in the cathode chamber being prevented. These gas cushions are undesirable since they reduce the size of the exchange surfaces available for electrolysis, which in turn results in increased cell resistance.

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung einer Alkalimetallalkoholatlösung  $L_1$  in einer Elektrolysezelle E. Die Elektrolysezelle E umfasst mindestens eine Kathodenkammer  $K_K$ , mindestens eine Anodenkammer  $K_A$  und mindestens eine dazwischen liegende Mittelkammer  $K_M$ . Der

WO 2023/016897 A1

**(81) Bestimmungsstaaten** (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

**(84) Bestimmungsstaaten** (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), europäisches (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

**Erklärungen gemäß Regel 4.17:**

— hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii)

**Veröffentlicht:**

— mit internationalem Recherchenbericht (Artikel 21 Absatz 3)  
 — vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eingehen (Regel 48 Absatz 2 Buchstabe h)

Innenraum  $I_{KK}$  der Kathodenkammer  $K_K$  ist durch eine Trennwand  $W$  umfassend mindestens eine kationenleitende Festelektrolytkeramik  $F_A$ , beispielsweise NaSICON, vom Innenraum  $I_{KM}$  der Mittelkammer  $K_M$  abgetrennt. Der Innenraum  $I_{KM}$  der Mittelkammer  $K_M$  ist durch eine Diffusionsbarriere  $D$ , beispielsweise eine für Kationen oder Anionen selektiven Membran oder eine nicht ionenspezifische Trennwand, vom Innenraum  $I_{KA}$  der Anodenkammer  $K_A$  abgetrennt. Der den Innenraum  $I_{KA}$  der Anodenkammer  $K_A$  begrenzende Teil  $O_{EA}$  der Oberseite  $O_E$  ist dabei als Ebene ausgebildet, deren Normale  $N_{OEA}$  einen Winkel  $0^\circ < \varphi_{EA} < 45^\circ$  zum Schwerkravtsvektor  $V_s$  ausbildet. Außerdem ist der Ablauf  $A_{KA}$  dann auf der oberen Hälfte von  $O_{EA}$  angeordnet. Alternativ oder zusätzlich, bevorzugt zusätzlich, ist der den Innenraum  $I_{KK}$  der Kathodenkammer  $K_K$  begrenzende Teil  $O_{EK}$  der Oberseite  $O_E$  als Ebene ausgebildet, deren Normale  $N_{OEK}$  einen Winkel  $0^\circ < \varphi_{EK} < 45^\circ$  zum Schwerkravtsvektor  $V_s$  ausbildet, und der Ablauf  $A_{KK}$  ist dann auf der oberen Hälfte von  $O_{EK}$  angeordnet. Diese Anordnung der jeweiligen Oberseiten und Abläufe führt dazu, dass die Ausbildung von Gaskissen in der Anodenkammer bzw. in der Kathodenkammer verhindert wird. Diese Gaskissen sind unerwünscht, da sie die Austauschflächen, die für die Elektrolyse zur Verfügung stehen, verkleinern, was wiederum zu einem erhöhten Zellwiderstand führt.

## VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON ALKALIMETALLALKOHOLATEN IN EINER ELEKTROLYSEZELLE

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung einer Alkalimetallalkoholatlösung  $L_1$  in einer Elektrolysezelle  $E$ .

5

Die Elektrolysezelle  $E$  umfasst mindestens eine Kathodenkammer  $K_K$ , mindestens eine Anodenkammer  $K_A$  und mindestens eine dazwischen liegende Mittelkammer  $K_M$ . Der Innenraum  $I_{KK}$  der Kathodenkammer  $K_K$  ist durch eine Trennwand  $W$  umfassend mindestens eine kationenleitende Festelektrolytkeramik  $F_A$ , beispielsweise NaSICON, vom Innenraum  $I_{KM}$  der Mittelkammer  $K_M$  abgetrennt. Der Innenraum  $I_{KM}$  der Mittelkammer  $K_M$  ist durch eine Diffusionsbarriere  $D$ , beispielsweise eine für Kationen oder Anionen selektiven Membran oder eine nicht ionenspezifische Trennwand, vom Innenraum  $I_{KA}$  der Anodenkammer  $K_A$  abgetrennt.

10

Der den Innenraum  $I_{KA}$  der Anodenkammer  $K_A$  begrenzende Teil  $O_{EA}$  der Oberseite  $O_E$  ist dabei als Ebene ausgebildet, deren Normale  $N_{OEA}$  einen Winkel  $0^\circ < \varphi_{EA} < 45^\circ$  zum Schwerkraftsvektor  $V_s$  ausbildet. Außerdem ist der Ablauf  $A_{KA}$  dann auf der oberen Hälfte von  $O_{EA}$  angeordnet.

15

Alternativ oder zusätzlich, bevorzugt zusätzlich, ist der den Innenraum  $I_{KK}$  der Kathodenkammer  $K_K$  begrenzende Teil  $O_{EK}$  der Oberseite  $O_E$  als Ebene ausgebildet, deren Normale  $N_{OEK}$  einen Winkel  $0^\circ < \varphi_{EK} < 45^\circ$  zum Schwerkraftsvektor  $V_s$  ausbildet, und der Ablauf  $A_{KK}$  ist dann auf der oberen Hälfte von  $O_{EK}$  angeordnet.

20

Diese Anordnung der jeweiligen Oberseiten und Abläufe führt dazu, dass die Ausbildung von Gaskissen in der Anodenkammer bzw. in der Kathodenkammer verhindert wird. Diese Gaskissen sind unerwünscht, da sie die Austauschflächen, die für die Elektrolyse zur Verfügung stehen, verkleinern, was wiederum zu einem erhöhten Zellwiderstand führt.

25

### 1. Hintergrund der Erfindung

Die elektrochemische Herstellung von Alkalimetallalkoholatlösungen ist ein wichtiger industrieller Prozess, der beispielsweise in der DE 103 60 758 A1, der US 2006/0226022 A1 und der WO 2005/059205 A1 beschrieben ist. Das Prinzip dieser Verfahren spiegelt sich in einer Elektrolysezelle wider, in deren Anodenkammer sich die Lösung eines Alkalisalzes, beispielsweise Kochsalz oder NaOH, und in deren Kathodenkammer sich der betreffende Alkohol oder eine niedrig konzentrierte alkoholische Lösung des betreffenden Alkalimetallalkoholates, beispielsweise Natriummethanolat oder Natriumethanolat, befinden. Die Kathodenkammer und die Anodenkammer sind durch eine das eingesetzte Alkalimetallion leitende Keramik getrennt, beispielsweise NaSICON oder ein Analogon für Kalium oder Lithium. Bei Anlegen eines Stroms entstehen an der Anode - wenn ein Chloridsalz des Alkalimetalls eingesetzt wird - Chlor und an der Kathode Wasserstoff und Alkoholationen. Der Ladungsausgleich erfolgt dadurch, dass

30

35

Alkalimetallionen aus der Mittelkammer in die Kathodenkammer über die für sie selektive Keramik wandern. Der Ladungsausgleich zwischen Mittelkammer und Anodenkammer erfolgt durch die Wanderung von Kationen bei Einsatz von Kationenaustauschermembranen oder die Wanderung von Anionen bei Einsatz von Anionenaustauschermembranen oder durch Wanderung beider Ionenarten bei Einsatz nichtspezifischer Diffusionsbarrieren. Dadurch erhöht sich die Konzentration des Alkalimetallalkoholats in der Kathodenkammer und es erniedrigt sich die Konzentration der Natriumionen im Anolyten.

NaSICON-Festelektrolyte werden auch bei der elektrochemischen Herstellung anderer Verbindungen eingesetzt:

WO 2014/008410 A1 beschreibt ein elektrolytisches Verfahren zur Herstellung von elementarem Titan oder Seltenen Erden. Dieses Verfahren beruht darauf, dass Titanchlorid aus  $\text{TiO}_2$  und der entsprechenden Säure gebildet wird, dieses mit Natriumalkoholat zum Titaniumalkoholat und NaCl reagiert und schließlich elektrolytisch zu elementarem Titan und Natriumalkoholat umgesetzt wird.

WO 2007/082092 A2 und WO 2009/059315 A1 beschreiben Verfahren zur Herstellung von Biodiesel, in denen mithilfe von über NaSICON elektrolytisch hergestellten Alkoholaten zunächst Triglyceride in die entsprechenden Alkalimetalltriglyceride überführt werden und in einem zweiten Schritt mit elektrolytisch erzeugten Protonen zu Glycerin und dem jeweiligen Alkalimetallhydroxid umgesetzt werden.

Ein Nachteil der im Stand der Technik beschriebenen Elektrolysezellen besteht allerdings darin, dass sich während der Elektrolyse Gase in den jeweiligen Kammern ausbilden, da die Abführung der Elektrolyten und Gase aus diesen nur punktuell erfolgt. Da das gebildete Gas dichtbestimmt in den Elektrolyten nach oben steigt, sammelt es sich an der gesamten Oberseite der Elektrolysezellkammern. Dieser gasbefüllte Teil der Kammer kann nicht mehr an der elektrochemischen Umsetzung teilnehmen, da durch die Gaspolster eine Isolierung der senkrecht verlaufenden Kammerwände, die gleichzeitig die Übergänge von  $\text{Na}^+$ -Ionen sicherstellen, stattfindet. Durch die Verkleinerung der Austauschflächen steigt auch der Widerstand in der Zelle an, da dieser direkt proportional zu den Durchtrittsflächen ist. Dadurch verschlechtern sich auch die energiespezifischen Daten (Strom, Spannung) der Zelle, und der gesamte Prozess wird ökonomisch unrentabel.

Die Aufgabe der vorliegenden Erfindung bestand demnach darin, ein Verfahren zur Herstellung einer Alkalimetallalkoholatlösung in einer Elektrolysezelle zur Verfügung zu stellen, das diesen Nachteil nicht aufweist.

Ein weiterer Nachteil herkömmlicher Elektrolysezellen auf diesem technischen Gebiet ergibt sich daraus, dass der Festelektrolyt nicht gegenüber wässrigen Säuren langzeitstabil ist. Dies ist insofern problematisch, als während der Elektrolyse in der Anodenkammer der pH durch

Oxidationsprozesse sinkt (zum Beispiel bei Herstellung von Halogenen durch Disproportionierung oder durch Sauerstoffbildung). Diese sauren Bedingungen greifen den NaSICON-Festelektrolyten an, so dass das Verfahren nicht großtechnisch eingesetzt werden kann. Um diesem Problem zu begegnen, wurden im Stand der Technik verschiedene Ansätze beschrieben.

5

So wurden im Stand der Technik Dreikammerzellen vorgeschlagen. Solche sind auf dem Gebiet der Elektrodialyse bekannt, zum Beispiel US 6,221,225 B1.

WO 2012/048032 A2 und US 2010/0044242 A1 beschreiben beispielsweise elektrochemische  
10 Verfahren zur Herstellung von Natriumhypochlorit und ähnlichen Chlorverbindungen in einer solchen Dreikammerzelle. Die Kathodenkammer und die mittlere Kammer der Zelle werden dabei durch einen für Kationen durchlässigen Festelektrolyten wie zum Beispiel NaSICON getrennt. Um diesen vor dem sauren Anolyten zu schützen, wird der Mittelkammer beispielsweise Lösung aus der Kathodenkammer zugeführt. Die US 2010/0044242 A1 beschreibt außerdem in Abbildung 6,  
15 dass Lösung aus der mittleren Kammer mit Lösung aus der Anodenkammer außerhalb der Kammer vermischt werden kann, um Natriumhypochlorit zu erhalten.

Auch für die Herstellung oder Reinigung von Alkalialkoholaten wurden solche Zellen im Stand der Technik vorgeschlagen.

20

So beschreibt die US 5,389,211 A ein Verfahren zur Reinigung von Alkoholatlösungen, in denen eine Dreikammerzelle eingesetzt wird, in welcher die Kammern durch kationenselektive Festelektrolyten oder auch nichtionische Trennwände voneinander abgegrenzt sind. Die Mittelkammer wird als Pufferkammer eingesetzt, um zu verhindern, dass sich die gereinigte  
25 Alkoxid- oder Hydroxidlösung aus der Kathodenkammer mit der verunreinigten Lösung aus der Anodenkammer mischt.

Die DE 42 33 191 A1 beschreibt die elektrolytische Gewinnung von Alkoholaten aus Salzen und Alkoholaten in Mehrkammerzellen und Stapeln aus mehreren Zellen.

30

Die WO 2008/076327 A1 beschreibt ein Verfahren zur Herstellung von Alkalimetallalkoholaten. Dabei wird eine Dreikammerzelle eingesetzt, deren Mittelkammer mit Alkalimetallalkoholat gefüllt ist (siehe zum Beispiel Absätze [0008] und [0067] der WO 2008/076327 A1). Dadurch wird der die Mittelkammer und die Kathodenkammer abtrennende Festelektrolyt vor der in der Anodenkammer  
35 befindlichen Lösung, die bei der Elektrolyse saurer wird, geschützt. Eine ähnliche Anordnung beschreibt die WO 2009/073062 A1. Diese Anordnung hat allerdings den Nachteil, dass es sich bei der Alkalimetallalkoholatlösung, welche als Pufferlösung verbraucht und kontinuierlich kontaminiert wird, um das gewünschte Produkt handelt. Ein weiterer Nachteil des in der WO 2008/076327 A1 beschriebenen Verfahrens ist, dass die Bildung des Alkoholats in der Kathodenkammer von der

Diffusionsgeschwindigkeit der Alkalimetallionen durch zwei Membranen bzw. Festelektrolyten abhängt. Dies führt wiederum zu einer Verlangsamung der Bildung des Alkoholats.

5 Ein weiteres Problem ergibt sich durch die Geometrie der Dreikammerzelle. Die Mittelkammer ist in einer solchen Kammer durch eine Diffusionsbarriere von der Anodenkammer und durch eine ionenleitende Keramik von der Kathodenkammer abgetrennt. Während der Elektrolyse kommt es damit unvermeidlich zur Ausbildung von pH-Gradienten und zu Totvolumina. Dies kann die ionenleitende Keramik schädigen und infolgedessen den Spannungsbedarf der Elektrolyse erhöhen und/oder zum Bruch der Keramik führen.

10

Während dieser Effekt in der gesamten Elektrolysekammer stattfindet, ist der Abfall des pH-Wertes besonders kritisch in der Mittelkammer, da diese von der ionenleitenden Keramik begrenzt wird. An der Anode und der Kathode werden üblicherweise Gase gebildet, sodass es in diesen Kammern zumindest bis zu einem gewissen Grad zur Durchmischung kommt. Eine solche Durchmischung 15 findet dagegen in der Mittelkammer nicht statt, so dass sich in ihr der pH-Gradient ausbildet. Dieser unerwünschte Effekt verstärkt sich dadurch, dass die Sole im Allgemeinen relativ langsam durch die Elektrolysezelle gepumpt wird.

20 Eine weitere Aufgabe der vorliegenden Erfindung bestand deshalb darin, ein verbessertes Verfahren zur elektrolytischen Herstellung von Alkalimetallalkoholat zur Verfügung zu stellen. Diese sollen die vorgenannten Nachteile nicht aufweisen und insbesondere einen verbesserten Schutz des Festelektrolyten vor der Ausbildung des pH-Gradienten sowie einen gegenüber dem Stand der Technik sparsameren Einsatz der Edukte gewährleisten.

## 25 **2. Kurzbeschreibung der Erfindung**

Die erfindungsgemäßen Aufgaben werden durch das Verfahren nach Anspruch 1 gelöst.

## **3. Abbildungen**

### 30 3.1 Abbildungen 1 A und 1 B

Die Abbildungen 1 A (= „Fig. 1 A“) und 1 B (= „Fig. 1 B“) zeigen eine Ausführungsform eines nicht erfindungsgemäßen Verfahrens anhand einer Elektrolysezelle, bei der es sich um eine Zweikammerzelle handelt. In beiden Abbildungen ist dieselbe Elektrolysezelle aus einer anderen 35 Perspektive dargestellt. Die in Fig. 1 A dargestellte Perspektive entspricht der Perspektive bei Draufsicht auf die in Fig. 1 B gezeigte Elektrolysezelle in Richtung des Pfeiles <30>.

Die Elektrolysezelle umfasst eine Kathodenkammer  $K_K$  <12> und eine Anodenkammer  $K_A$  <11>.

Die Anodenkammer  $K_A <11>$  umfasst eine anodische Elektrode  $E_A <113>$  im Innenraum  $I_{KA} <112>$ , einen Zulauf  $Z_{KK} <110>$  und einen Ablauf  $A_{KA} <111>$ .

Die Kathodenkammer  $K_K <12>$  umfasst eine kathodische Elektrode  $E_K <123>$  im Innenraum  $I_{KK} <122>$ , einen Zulauf  $Z_{KK} <120>$  und einen Ablauf  $A_{KK} <121>$ .

5

Die Elektrolysezelle bildet seitlich und am Boden ein Behältnis  $B_E <800>$  und oben eine ebene Oberseite  $O_E <801>$  aus. Der Innenraum  $I_{KA} <112>$  wird durch einen Teil  $O_{EA} <8011>$  der Oberseite  $O_E <801>$  und einen Teil  $B_{EA} <8001>$  des Behältnisses  $B_E <800>$  begrenzt. Der Innenraum  $I_{KK} <122>$  wird durch einen Teil  $O_{EK} <8012>$  der Oberseite  $O_E <801>$  und einen Teil  $B_{EK} <8002>$  des Behältnisses  $B_E <800>$  begrenzt.

10

Der Innenraum  $I_{KK} <122>$  ist außerdem durch eine Trennwand  $W <16>$ , die aus einer Scheibe eines für Natriumionen selektiv permeablen NaSICON-Festelektrolyten  $F_A <18>$  besteht, vom Innenraum  $I_{KA} <112>$  abgetrennt. Der NaSICON-Festelektrolyt  $F_A <18>$  erstreckt sich über die gesamte Tiefe und Höhe der Zweikammerzelle. Der NaSICON-Festelektrolyt  $F_A <18>$  kontaktiert die beiden Innenräume  $I_{KK} <122>$  und  $I_{KA} <112>$  direkt, so dass Natriumionen vom einen in den anderen Innenraum durch den NaSICON-Festelektrolyten  $F_A <18>$  geleitet werden können.

15

Wie aus Fig. 1 B ersichtlich, ist die Elektrolysezelle geneigt, womit auch die ebene Oberseite  $O_E <801>$  und damit auch die beiden Teile  $O_{EA} <8011>$  und  $O_{EK} <8012>$  geneigt werden. Der Winkel  $\varphi_{EA}$  bzw.  $\varphi_{EK}$  der jeweiligen Normalen  $N_{OEA} <91>$  und  $N_{OEK} <92>$  der Ebene  $O_{EA} <8011>$  und  $O_{EK} <8012>$  gegenüber dem Vektor der Schwerkraft  $V_s <90>$  liegt dabei bei  $\sim 25^\circ$ . Die beiden Abläufe  $A_{KA} <111>$  und  $A_{KK} <121>$  sind nahe an der höchsten Kante der Elektrolysezelle  $E <1>$  angeordnet.

20

25

Eine wässrige Lösung von Natriumchlorid  $L_3 <23>$  mit pH 10.5 wird über den Zulauf  $Z_{KA} <110>$  entgegen der Schwerkraft in den Innenraum  $I_{KA} <112>$  gegeben.

Über den Zulauf  $Z_{KK} <120>$  wird eine Lösung von Natriummethanolat in Methanol  $L_2 <22>$  in den Innenraum  $I_{KK} <122>$  geleitet.

30

Es wird dabei eine Spannung zwischen der kathodischen Elektrode  $E_K <123>$  und der anodischen Elektrode  $E_A <113>$  angelegt. Dadurch wird im Innenraum  $I_{KK} <122>$  Methanol im Elektrolyten  $L_2 <22>$  zu Methanolat und  $H_2$  reduziert ( $CH_3OH + e^- \rightarrow CH_3O^- + \frac{1}{2} H_2$ ). Natriumionen diffundieren dabei vom Innenraum  $I_{KA} <112>$  durch den NaSICON-Festelektrolyten  $F_A <18>$  in den Innenraum  $I_{KK} <122>$ . Insgesamt erhöht sich dadurch die Konzentration von Natriummethanolat im Innenraum  $I_{KK} <122>$ , wodurch eine methanolische Lösung von Natriummethanolat  $L_1 <21>$  erhalten wird, deren Konzentration an Natriummethanolat gegenüber  $L_2 <22>$  erhöht ist.

35

Im Innenraum  $I_{KA}$  <112> findet die Oxidation von Chloridionen zu molekularem Chlor statt ( $Cl^- \rightarrow \frac{1}{2} Cl_2 + e^-$ ). Am Ablauf  $A_{KA}$  <111> wird eine wässrige Lösung  $L_4$  <24> erhalten, in der der Gehalt an NaCl gegenüber  $L_3$  <23> verringert ist. Chlorgas  $Cl_2$  bildet in Wasser gemäß der Reaktion  $Cl_2 + H_2O \rightarrow HOCl + HCl$  hypochlorige Säure und Salzsäure, welche mit weiteren

5 Wassermolekülen sauer reagieren. Die Acidität schädigt den NaSICON-Festelektrolyten  $F_A$  <18>.

Durch die schräge Neigung der Elektrolysezelle und die Anordnung der Abläufe  $A_{KA}$  <111> und  $A_{KK}$  <121> nahe an ihrem höchsten Punkt bzw. ihrer höchsten Kante werden sich bildende Gase (z.B. Chlorgas in der Anodenkammer  $K_A$  <11> und Wasserstoffgas in der Kathodenkammer  $K_K$  <12>) effizient und schnell abgeführt, wodurch die Ausbildung eines Gaskissens verhindert wird. Durch die schnelle Abführung des Chlorgases wird außerdem die säurebildende Reaktion  $Cl_2 + H_2O \rightarrow HOCl + HCl$  und damit der Anstieg der Acidität in der Anodenkammer  $K_A$  <11> eingedämmt, was wiederum die Lebensdauer des NaSICON-Festelektrolyten verlängert.

10

### 15 3.2 Abbildungen 2 A und 2 B

Die Abbildungen 2 A (= „Fig. 2 A“) und 2 B (= „Fig. 2 B“) zeigen eine Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens. Sie zeigen das erfindungsgemäße Verfahren anhand einer Elektrolysezelle  $E$  <1>, bei der es sich um eine Dreikammerzelle handelt. In beiden Abbildungen ist

20 dieselbe Elektrolysezelle  $E$  <1> aus einer anderen Perspektive dargestellt. Die in Fig. 2 A dargestellte Perspektive entspricht der Perspektive bei Draufsicht auf die in Fig. 2 B gezeigte Elektrolysezelle  $E$  <1> in Richtung des Pfeiles <30>.

Die Dreikammerelektrolysezelle  $E$  <1> umfasst eine Kathodenkammer  $K_K$  <12>, eine Anodenkammer  $K_A$  <11> und eine dazwischen liegenden Mittelkammer  $K_M$  <13>.

25

Die Anodenkammer  $K_A$  <11> umfasst eine anodische Elektrode  $E_A$  <113> im Innenraum  $I_{KA}$  <112>, einen Zulauf  $Z_{KK}$  <110> und einen Ablauf  $A_{KA}$  <111>.

Die Kathodenkammer  $K_K$  <12> umfasst eine kathodische Elektrode  $E_K$  <123> im Innenraum  $I_{KK}$  <122>, einen Zulauf  $Z_{KM}$  <120> und einen Ablauf  $A_{KK}$  <121>.

30 Die Mittelkammer  $K_M$  <13> umfasst einen Innenraum  $I_{KM}$  <132>, einen Zulauf  $Z_{KM}$  <130> und einen Ablauf  $A_{KM}$  <131>. Der Innenraum  $I_{KA}$  <112> ist mit dem Innenraum  $I_{KM}$  <132> über die Verbindung  $V_{AM}$  <15> verbunden.

Die Elektrolysezelle  $E$  <1> bildet seitlich und am Boden ein Behältnis  $B_E$  <800> und oben eine

35 ebene Oberseite  $O_E$  <801> aus. Der Innenraum  $I_{KA}$  <112> wird durch einen Teil  $O_{EA}$  <8011> der Oberseite  $O_E$  <801> und einen Teil  $B_{EA}$  <8001> des Behältnisses  $B_E$  <800> begrenzt. Der Innenraum  $I_{KK}$  <122> wird durch einen Teil  $O_{EK}$  <8012> der Oberseite  $O_E$  <801> und einen Teil  $B_{EK}$  <8002> des Behältnisses  $B_E$  <800> begrenzt. Der Innenraum  $I_{KM}$  <132> wird durch einen Teil  $O_{EM}$  <8013> der Oberseite  $O_E$  <801> und einen Teil  $B_{EM}$  <8003> des Behältnisses  $B_E$  <800> begrenzt.

40

Der Innenraum  $I_{KK}$  <122> ist außerdem durch eine Trennwand  $W$  <16>, die aus einer Scheibe eines für Natriumionen selektiv permeablen NaSICON-Festelektrolyten  $F_A$  <18> besteht, vom Innenraum  $I_{KM}$  <132> abgetrennt. Der NaSICON-Festelektrolyt  $F_A$  <18> erstreckt sich über die gesamte Tiefe und Höhe der Dreikammerzelle  $E$  <1>. Der NaSICON-Festelektrolyt  $F_A$  <18> kontaktiert die beiden Innenräume  $I_{KK}$  <122> und  $I_{KM}$  <132> direkt, so dass Natriumionen vom einen in den anderen Innenraum durch den NaSICON-Festelektrolyten  $F_A$  <18> geleitet werden können.

Der Innenraum  $I_{KM}$  <132> der Mittelkammer  $K_M$  <13> ist zusätzlich wiederum durch eine Diffusionsbarriere  $D$  <14> vom Innenraum  $I_{KA}$  <112> der Anodenkammer  $K_A$  <11> abgetrennt. Der NaSICON-Festelektrolyt  $F_A$  <18> und die Diffusionsbarriere  $D$  <14> erstrecken sich über die gesamte Tiefe und Höhe der Dreikammerzelle  $E$  <1>. Die Diffusionsbarriere  $D$  <14> ist eine Kationenaustauschermembran (sulfoniertes PTFE).

In der Ausführungsform gemäß den Abbildungen 2 A und 2 B wird die Verbindung  $V_{AM}$  <15> außerhalb der Elektrolysezelle  $E$  <1> ausgebildet, insbesondere durch ein Rohr oder Schlauch, dessen Material aus Gummi, Metall oder Kunststoff ausgewählt sein kann. Durch die Verbindung  $V_{AM}$  <15> kann Flüssigkeit aus dem Innenraum  $I_{KM}$  <132> der Mittelkammer  $K_M$  <13> in den Innenraum  $I_{KA}$  <112> der Anodenkammer  $K_A$  <11> außerhalb der Dreikammerzelle  $E$  <1> geleitet werden. Die Verbindung  $V_{AM}$  <15> verbindet einen Ablauf  $A_{KM}$  <131>, der am Boden der Mittelkammer  $K_M$  <13> das Behältnis  $B_E$  <800> der Elektrolysezelle  $E$  <1> durchbricht, mit einem Zulauf  $Z_{KA}$  <110>, der am Boden der Anodenkammer  $K_A$  <11> das Behältnis  $B_E$  <800> der Elektrolysezelle  $E$  <1> durchbricht.

Wie aus Fig. 2 B ersichtlich, ist die Elektrolysezelle  $E$  <1> geneigt, womit auch die ebene Oberseite  $O_E$  <801> und damit auch die beiden Teile  $O_{EA}$  <8011> und  $O_{EK}$  <8012> geneigt werden. Die beiden Abläufe  $A_{KA}$  <111> und  $A_{KK}$  <121> sind nahe an der höchsten Kante der Elektrolysezelle  $E$  <1> angeordnet. Der Winkel  $\varphi_{EA}$  bzw.  $\varphi_{EK}$  der jeweiligen Normalen  $N_{OEA}$  <91> und  $N_{OEK}$  <92> der Ebene  $O_{EA}$  <8011> und  $O_{EK}$  <8012> gegenüber dem Vektor der Schwerkraft  $V_s$  <90> liegt dabei bei  $\sim 25^\circ$ .

Eine wässrige Lösung von Natriumchlorid  $L_3$  <23> mit pH 10.5 wird über den Zulauf  $Z_{KM}$  <130> gleichgerichtet mit der Schwerkraft in den Innenraum  $I_{KM}$  <132> der Mittelkammer  $K_M$  <13> gegeben. Durch die Verbindung  $V_{AM}$  <15>, die zwischen dem Ablauf  $A_{KM}$  <131> der Mittelkammer  $K_M$  <13> und einem Zulauf  $Z_{KA}$  <110> der Anodenkammer  $K_A$  <11> ausgebildet ist, ist der Innenraum  $I_{KM}$  <132> der Mittelkammer  $K_M$  <13> mit dem Innenraum  $I_{KA}$  <112> der Anodenkammer  $K_A$  <11> verbunden. Natriumchloridlösung  $L_3$  <23> wird durch diese Verbindung  $V_{AM}$  <15> vom Innenraum  $I_{KM}$  <132> in den Innenraum  $I_{KA}$  <112> geleitet.

Über den Zulauf  $Z_{KK}$  <120> wird eine Lösung von Natriummethanolat in Methanol  $L_2$  <22> in den Innenraum  $I_{KK}$  <122> geleitet.

Es wird dabei eine Spannung zwischen der kathodischen Elektrode  $E_K$  <123> und der anodischen Elektrode  $E_A$  <113> angelegt. Dadurch wird im Innenraum  $I_{KK}$  <122> Methanol im Elektrolyten  $L_2$  <22> zu Methanolat und  $H_2$  reduziert ( $CH_3OH + e^- \rightarrow CH_3O^- + \frac{1}{2} H_2$ ). Natriumionen diffundieren dabei vom Innenraum  $I_{KM}$  <132> der Mittelkammer  $K_M$  <103> durch den NaSICON-Festelektrolyten  $F_A$  <18> in den Innenraum  $I_{KK}$  <122>. Insgesamt erhöht sich dadurch die Konzentration von Natriummethanolat im Innenraum  $I_{KK}$  <122>, wodurch eine methanolische Lösung von Natriummethanolat  $L_1$  <21> erhalten wird, deren Konzentration an Natriummethanolat gegenüber  $L_2$  <22> erhöht ist.

10

Im Innenraum  $I_{KA}$  <112> findet die Oxidation von Chloridionen zu molekularem Chlor statt ( $Cl^- \rightarrow \frac{1}{2} Cl_2 + e^-$ ). Am Ablauf  $A_{KA}$  <111> wird eine wässrige Lösung  $L_4$  <24> erhalten, in der der Gehalt an NaCl gegenüber  $L_3$  <23> verringert ist. Chlorgas  $Cl_2$  bildet in Wasser gemäß der Reaktion  $Cl_2 + H_2O \rightarrow HOCl + HCl$  hypochlorige Säure und Salzsäure, welche mit weiteren Wassermolekülen sauer reagieren. Die Acidität würde den NaSICON-Festelektrolyten  $F_A$  <18> schädigen, wird aber durch die Anordnung in der Dreikammerzelle auf die Anodenkammer  $K_A$  <11> begrenzt und somit in der Elektrolysezelle  $E$  vom NaSICON-Festelektrolyten  $F_A$  <18> ferngehalten. Dadurch erhöht sich dessen Lebensdauer beträchtlich.

20

Durch die schräge Neigung der Elektrolysezelle  $E$  <1> und die Anordnung der Abläufe  $A_{KA}$  <111> und  $A_{KK}$  <121> nahe an ihrem höchsten Punkt bzw. ihrer höchsten Kante werden sich bildende Gase (z.B. Chlorgas in der Anodenkammer  $K_A$  <11> und Wasserstoffgas in der Kathodenkammer  $K_K$  <12>) effizient und schnell abgeführt, wodurch die Ausbildung eines Gaskissens verhindert wird. Durch die schnelle Abführung des Chlorgases wird außerdem die säurebildende Reaktion  $Cl_2 + H_2O \rightarrow HOCl + HCl$  und damit der Anstieg der Acidität in der Anodenkammer  $K_A$  <11> zusätzlich eingedämmt, was wiederum die Lebensdauer des NaSICON-Festelektrolyten verlängert.

25

Bei der in den Abbildungen 2 A und 2 B gezeigten Ausführungsform handelt es sich um eine erfindungsgemäße Ausführungsform, da beide Bedingungen (i) und (ii) erfüllt sind. Die erfindungsgemäß bevorzugte Bedingung (iii) ist dabei nicht erfüllt, denn  $O_{EM}$  <8013> ist zwar als Ebene, deren Normale  $N_{OEM}$  einen Winkel  $\varphi_{EM}$  von  $\sim 25^\circ$  zum Schwerkraftsvektor  $V_s$  ausbildet, ausgebildet, jedoch ist der Ablauf  $A_{KM}$  <131> nicht auf der oberen Hälfte von  $O_{EM}$  <8013>, sondern am Boden der Mittelkammer  $K_M$  <13> angeordnet. Stattdessen ist der Zulauf  $Z_{KM}$  <130> auf der oberen Hälfte von  $O_{EM}$  <8013> angeordnet.

35

### 3.3 Abbildungen 3 A und 3 B

Die Abbildungen 3 A (= „Fig. 3 A“) und 3 B (= „Fig. 3 B“) zeigen eine weitere Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens. Dieses wird in einer Elektrolysezelle  $E$  <1> durchgeführt, welche

der in Abbildungen 2 A und 2 B dargestellten Elektrolysezelle **E** <1> mit dem folgenden Unterschied entspricht:

Die Verbindung  $V_{AM}$  <15> vom Innenraum  $I_{KM}$  <132> der Mittelkammer  $K_M$  <13> zum Innenraum  $I_{KA}$  <112> der Anodenkammer  $K_A$  <11> wird nicht außerhalb, sondern durch eine Perforation in der Diffusionsbarriere **D** <14> innerhalb der Elektrolysezelle **E** <1> gebildet. Diese Perforation kann in  
 5 die Diffusionsbarriere **D** <14> nachträglich (etwa durch Stanzen, Bohren) eingeführt werden oder schon aufgrund der Herstellung der Diffusionsbarriere **D** <14> von Vorneherein in dieser vorliegen (z.B. bei textilen Geweben wie Filtertüchern oder Metallgeweben).

#### 10 3.4 Abbildung 4

Abbildung 4 (= „Fig. 4“) zeigt eine weitere Ausführungsform eines nicht erfindungsgemäßen Verfahrens anhand einer Elektrolysezelle **E**, bei der es sich um eine Zweikammerzelle handelt.

15 Diese entspricht der in Abbildungen 1 A und 1 B dargestellten Elektrolysezelle **E** und unterscheidet sich von dieser in den geometrischen Verhältnissen. In der Elektrolysezelle **E** gemäß Fig. 1 A und 1 B sind der Boden und die Oberseite  $O_E$  <801> im Wesentlichen parallele Ebenen und die Innenräume  $I_{KK}$  <122> und  $I_{KA}$  <112> weisen im Wesentlichen die Form eines Quaders auf. Die Neigung der Oberseite  $O_E$  <801> wird durch Neigung der gesamten Elektrolysezelle **E**  
 20 gewährleistet.

Demgegenüber ist die Oberseite  $O_E$  <801> in der Elektrolysezelle **E** in Fig. 4 nicht parallel zum Boden, und die Innenräume  $I_{KK}$  <122> und  $I_{KA}$  <112> weisen einen trapezförmigen Durchschnitt auf. Der Winkel  $\varphi_{EA}$  bzw.  $\varphi_{EK}$  der jeweiligen Normalen  $N_{OEA}$  <91> und  $N_{OEK}$  <92> der Ebene  $O_{EA}$  <8011> und  $O_{EK}$  <8012> gegenüber dem Vektor der Schwerkraft  $V_s$  <90> liegt dabei bei  $\sim 11^\circ$ .  
 25 Dies hat den Vorteil, dass nicht die gesamte Elektrolysezelle **E** geneigt werden muss, und dennoch die beiden Ebenen  $O_{EA}$  <8011> und  $O_{EK}$  <8012> die Neigung ausbilden. Dies verleiht dem Aufbau eine höhere Stabilität.

#### 30 3.5 Abbildung 5

Abbildung 5 (= „Fig. 5“) zeigt eine weitere Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens. Sie zeigt das erfindungsgemäße Verfahren anhand einer Elektrolysezelle **E** <1>, bei der es sich um eine Dreikammerzelle handelt.

35

Diese entspricht der in Abbildungen 2 A und 2 B dargestellten Elektrolysezelle **E** <1> und unterscheidet sich von dieser in den geometrischen Verhältnissen: In der Elektrolysezelle **E** <1> gemäß Fig. 2 A und 2 B sind der Boden und die Oberseite  $O_E$  <801> im Wesentlichen parallele Ebenen und die Innenräume  $I_{KK}$  <122>,  $I_{KA}$  <112> und  $I_{KM}$  <132> weisen im Wesentlichen die

Form eines Quaders auf. Die Neigung der Oberseite  $O_E <801>$  wird durch Neigung der gesamten Elektrolysezelle  $E <1>$  gewährleistet.

5 Demgegenüber ist die Oberseite  $O_E <801>$  in der Elektrolysezelle  $E <1>$  in Fig. 5 nicht parallel zum Boden, und die Innenräume  $I_{KK} <122>$ ,  $I_{KA} <112>$  und  $I_{KM} <132>$  weisen einen trapezförmigen Durchschnitt auf. Der Winkel  $\varphi_{EA}$  bzw.  $\varphi_{EK}$  der jeweiligen Normalen  $N_{OEA} <91>$  und  $N_{OEK} <92>$  der Ebene  $O_{EA} <8011>$  und  $O_{EK} <8012>$  gegenüber dem Vektor der Schwerkraft  $V_s <90>$  liegt dabei bei  $\sim 11^\circ$ .

10 Dies hat den Vorteil, dass nicht die gesamte Elektrolysezelle  $E <1>$  geneigt werden muss, und dennoch die beiden Ebenen  $O_{EA} <8011>$  und  $O_{EK} <8012>$  die erfindungsgemäße Neigung ausbilden. Dies verleiht dem Aufbau eine höhere Stabilität.

In der in Abbildung 5 gezeigten Ausführungsform handelt es sich um eine erfindungsgemäße Ausführungsform, da beide Bedingungen (i) und (ii) erfüllt sind. Die erfindungsgemäß bevorzugte  
15 Bedingung (iii) ist dabei nicht erfüllt, denn  $O_{EM} <8013>$  ist zwar als Ebene, deren Normale  $N_{OEM}$  einen Winkel  $\varphi_{EM}$  von  $\sim 11^\circ$  zum Schwerkraftsvektor  $V_s$  ausbildet, ausgebildet, jedoch ist der Ablauf  $A_{KM} <131>$  nicht auf der oberen Hälfte von  $O_{EM} <8013>$ , sondern am Boden der Mittelkammer  $K_M <13>$  angeordnet. Stattdessen ist der Zulauf  $Z_{KM} <130>$  auf der oberen Hälfte von  $O_{EM} <8013>$  angeordnet.

20

### 3.6 Abbildung 6

Abbildung 6 (= „Fig. 6“) zeigt eine nicht erfindungsgemäße Ausführungsform des Verfahrens. Darin wird eine Zweikammerelektrolysezelle  $E$  wie für Abbildungen 1 A und 1 B beschrieben benutzt, bis  
25 darauf, dass diese nicht geneigt sind und die beiden Abläufe  $A_{KA} <111>$  und  $A_{KK} <121>$  in der Mitte der jeweiligen Ebene  $O_{EA} <8011>$  und  $O_{EK} <8012>$  angeordnet ist.

### 3.7 Abbildung 7

30 Abbildung 7 (= „Fig. 7“) zeigt eine nicht erfindungsgemäße Ausführungsform des Verfahrens. Darin wird eine Dreikammerelektrolysezelle  $E$  wie für Abbildungen 2 A und 2 B beschrieben benutzt, bis darauf, dass diese nicht geneigt sind und die beiden Abläufe  $A_{KA} <111>$  und  $A_{KK} <121>$  in der Mitte der jeweiligen Ebene  $O_{EA} <8011>$  und  $O_{EK} <8012>$  angeordnet ist.

### 3.8 Abbildung 8

35 Abbildung 8 (= „Fig. 8“) zeigt eine weitere Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens. Sie zeigt das erfindungsgemäße Verfahren anhand einer Elektrolysezelle  $E <1>$ , bei der es sich um eine Dreikammerzelle handelt.

Diese entspricht der in Abbildung 5 dargestellten Elektrolysezelle **E** <1> und unterscheidet sich von dieser darin, dass der Ablauf **A<sub>KM</sub>** <131> auf der oberen Hälfte von **O<sub>EM</sub>** <8013> angeordnet ist und der Zulauf **Z<sub>KM</sub>** <130> den Boden der Mittelkammer **K<sub>M</sub>** <13> durchbricht. Ablauf **A<sub>KM</sub>** <131> ist mit dem Zulauf **Z<sub>KA</sub>** <110>, der den Boden der Anodenkammer **K<sub>A</sub>** <11> durchbricht, durch die Verbindung **V<sub>AM</sub>** <15> verbunden. Durch die Verbindung **V<sub>AM</sub>** <15>, die zwischen dem Ablauf **A<sub>KM</sub>** <131> der Mittelkammer **K<sub>M</sub>** <13> und einem Zulauf **Z<sub>KA</sub>** <110> der Anodenkammer **K<sub>A</sub>** <11> ausgebildet ist, ist der Innenraum **I<sub>KM</sub>** <132> der Mittelkammer **K<sub>M</sub>** <13> mit dem Innenraum **I<sub>KA</sub>** <112> der Anodenkammer **K<sub>A</sub>** <11> verbunden. Natriumchloridlösung **L<sub>3</sub>** <23> wird durch diese Verbindung **V<sub>AM</sub>** <15> vom Innenraum **I<sub>KM</sub>** <132> in den Innenraum **I<sub>KA</sub>** <112> geleitet. Die Fließrichtung von **L<sub>3</sub>** <23> in **V<sub>AM</sub>** <15> ist durch die gestrichelten Pfeile angedeutet.

Bei der in Abbildung 8 gezeigten Ausführungsform handelt es sich um eine erfindungsgemäße Ausführungsform, da beide Bedingungen (i) und (ii) erfüllt sind. Die erfindungsgemäß bevorzugte Bedingung (iii) ist dabei auch erfüllt, denn **O<sub>EM</sub>** <8013> ist als Ebene, deren Normale **N<sub>OEM</sub>** einen Winkel  $\varphi_{EM}$  von  $\sim 11^\circ$  zum Schwerkraftsvektor **V<sub>s</sub>** ausbildet, ausgebildet, und der Ablauf **A<sub>KM</sub>** <131> ist auf der oberen Hälfte von **O<sub>EM</sub>** <8013> angeordnet.

Die in Abbildung 8 dargestellte Ausführungsform entspricht der bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens, die unter Abschnitt 4.3.4 beschrieben ist.

Durch die Anordnung aller drei Abläufe **A<sub>KA</sub>** <111>, **A<sub>KM</sub>** <131> und **A<sub>KK</sub>** <121> auf der oberen Hälfte der jeweiligen schrägen Oberfläche **O<sub>EA</sub>** <8011>, **O<sub>EM</sub>** <8013> bzw. **O<sub>EK</sub>** <8012> wird die Ausbildung eines Gaskissens in allen drei Kammern verhindert.

#### 4. Detaillierte Beschreibung der Erfindung

##### 4.1 Elektrolysezelle **E**

25

Das erfindungsgemäße Verfahren wird in einer Elektrolysezelle **E** durchgeführt.

Die Elektrolysezelle **E** umfasst mindestens eine Anodenkammer **K<sub>A</sub>** und mindestens eine Kathodenkammer **K<sub>K</sub>** und mindestens eine dazwischen liegende Mittelkammer **K<sub>M</sub>**. Dies umfasst auch Elektrolysezellen **E**, welche mehr als eine Anodenkammer **K<sub>A</sub>** und/oder mehr als eine Kathodenkammer **K<sub>K</sub>** und/oder mehr als eine Mittelkammer **K<sub>M</sub>** aufweisen. Solche Elektrolysezellen, in denen diese Kammern modularartig aneinandergesetzt werden, sind beispielsweise in der DD 258 143 A3 und der US 2006/0226022 A1 beschrieben.

Die Elektrolysezelle **E** umfasst in einer bevorzugten Ausführungsform der Erfindung eine Anodenkammer **K<sub>A</sub>** und eine Kathodenkammer **K<sub>K</sub>** und eine dazwischen liegende Mittelkammer **K<sub>M</sub>**.

Die Elektrolysezelle **E** bildet ein Behältnis **B<sub>E</sub>** und eine Oberseite **O<sub>E</sub>** aus.

40

Das Behältnis  $B_E$  und die Oberseite  $O_E$  umfassen unabhängig voneinander insbesondere jeweils ein Material, welches aus der Gruppe bestehend aus Stahl, bevorzugt gummiertem Stahl, Kunststoff, der insbesondere aus Telene® (duroplastischem Polydicyclopentadien), PVC (Polyvinylchlorid), PVC-C (nachchloriertes Polyvinylchlorid), PVDF (Polyvinylidenfluorid)

5 ausgewählt ist. Bevorzugt umfassen das Behältnis  $B_E$  und die Oberseite  $O_E$  das gleiche Material. Noch bevorzugter sind sie dann mindestens teilweise einstückig, d.h. mindestens ein Teil des Behältnisses  $B_E$  bildet mit mindestens einem Teil der Oberseite  $O_E$  ein Stück aus.

Das Behältnis  $B_E$  und die Oberseite  $O_E$  sind insbesondere für Zuläufe und Abläufe durchbrochen.

10

Das Behältnis  $B_E$  und die Oberseite  $O_E$  bilden die Außenwand  $W_A$  der Elektrolysezelle  $E$  aus.

Innerhalb von  $B_E$  und  $O_E$  liegen die mindestens eine Anodenkammer  $K_A$ , die mindestens eine Kathodenkammer  $K_K$  und die mindestens eine dazwischen liegende Mittelkammer  $K_M$ . Das

15 Behältnis  $B_E$  bildet dabei den Boden und die Seitenwände der Elektrolysezelle  $E$ . Das Behältnis  $B_E$  bildet somit auch den Boden und die Seitenwände der von ihr umfassten mindestens einen Anodenkammer  $K_A$ , der von ihr umfassten mindestens einen Kathodenkammer  $K_K$  und der von ihr umfassten mindestens einen dazwischen liegenden Mittelkammer  $K_M$ . Der Boden bildet dabei bevorzugt im Wesentlichen eine Ebene aus, und jede der Seitenwände bildet jeweils noch

20 bevorzugter ebenfalls im Wesentlichen jeweils eine Ebene aus.

Die Oberseite  $O_E$  ist insbesondere im Wesentlichen als Ebene ausgebildet. „Oberseite“ impliziert, dass der tiefste Punkt der durch die Oberseite  $O_E$  definierten Ebene höher liegt (also weiter vom Erdmittelpunkt entfernt ist) als der tiefste Punkt des Behältnisses  $B_E$ .

25

In einer bevorzugten Ausführungsform bilden das Behältnis  $B_E$  und die Oberseite  $O_E$  im Wesentlichen einen Polyeder aus, bevorzugt einen Hexaeder, in dem mindestens ein Paar, bevorzugt mindestens zwei Paare gegenüberliegender Seiten jeweils parallel zueinander sind. Noch bevorzugter bilden das Behältnis  $B_E$  und die Oberseite  $O_E$  im Wesentlichen einen Quader

30 aus. In dieser Ausführungsform wird die Elektrolysezelle  $E$  dann so angeordnet, dass es eine Fläche des Polyeders gibt, auf der der höchste Punkt (d.h. der am weitesten vom Erdmittelpunkt entfernte) des Polyeders liegt und deren tiefster Punkt höher liegt als der tiefste Punkt der übrigen Seiten. Diese Fläche ist in dieser Ausführungsform dann die Oberseite  $O_E$  der Elektrolysezelle  $E$ , die restlichen Flächen bilden das Behältnis  $B_E$ .

#### 35 4.1.1 Kathodenkammer $K_K$

Die Kathodenkammer  $K_K$  weist mindestens einen Zulauf  $Z_{KK}$ , mindestens einen Ablauf  $A_{KK}$  und einen Innenraum  $I_{KK}$ , der eine kathodische Elektrode  $E_K$  umfasst, auf. Der Innenraum  $I_{KK}$  wird durch einen Teil  $O_{EK}$  der Oberseite  $O_E$  und einen Teil  $B_{EK}$  des Behältnisses  $B_E$  begrenzt. Demnach

wird der Teil der Oberseite  $O_E$ , der  $I_{KK}$  begrenzt, als  $O_{EK}$  bezeichnet, und der Teil des Behältnisses  $B_E$ , der  $I_{KK}$  begrenzt, als  $B_{EK}$  bezeichnet.

5 Der Innenraum  $I_{KK}$  der Kathodenkammer  $K_K$  ist durch die Trennwand  $W$  vom Innenraum  $I_{KM}$  der Mittelkammer  $K_M$  abgetrennt.

Die von der Trennwand  $W$  umfassten alkalikationenleitenden Festelektrolytkeramiken kontaktieren den Innenraum  $I_{KK}$  und den Innenraum  $I_{KM}$  direkt.

#### 4.1.1.1 Trennwand $W$

10

Die Trennwand  $W$  umfasst mindestens eine alkalikationenleitende Festelektrolytkeramik  $F_A$ . Das Merkmal „Trennwand“ bedeutet, dass die Trennwand  $W$  flüssigkeitsdicht ist. Dies bedeutet insbesondere, dass die Trennwand entweder eine alkalikationenleitende Festelektrolytkeramik umfasst, die Innenraum  $I_{KK}$  und den Innenraum  $I_{KM}$  vollständig voneinander abtrennt, oder mehrere

15 alkalikationenleitende Festelektrolytkeramiken umfasst, die z.B. lückenlos aneinander anschließen.

Jedenfalls existieren in der Trennwand  $W$  keine Lücken, durch welche wässrige Lösung, alkoholische Lösung, Alkohol oder Wasser von  $I_{KK}$  in  $I_{MK}$  oder umgekehrt fließen könnte.

20

„Direkt kontaktieren“ bedeutet für die Anordnung der alkalikationenleitenden Festelektrolytkeramiken in der Trennwand  $W$  und in der Elektrolysezelle  $E$ , dass es für jeden von der Trennwand  $W$  umfasste alkalikationenleitende Festelektrolytkeramik einen gedachten Weg von  $I_{KK}$  in  $I_{MK}$  gibt, der vollständig durch die jeweilige alkalikationenleitende Festelektrolytkeramik führt.

#### 4.1.1.2 Alkalikationenleitende Festelektrolytkeramik

25

Als von der Trennwand  $W$  umfasste mindestens eine alkalikationenleitende Festelektrolytkeramik  $F_A$  kommt jeder Festelektrolyt in Frage, durch welchen Kationen, insbesondere Alkalikationen, noch bevorzugter Natriumkationen, von  $I_{MK}$  in  $I_{KK}$  transportiert werden können. Solche Festelektrolyten sind dem Fachmann bekannt und beispielsweise in der DE 10 2015 013 155 A1, in der WO 2012/048032 A2, Absätze [0035], [0039], [0040], in der US 2010/0044242 A1, Absätze

30 [0040], [0041], in der DE 10360758 A1, Absätze [014] bis [025] beschrieben. Sie werden kommerziell unter dem Namen NaSICON, LiSICON, KSICON vertrieben. Ein natriumionenleitender Festelektrolyt ist bevorzugt, wobei dieser noch bevorzugter eine NaSICON-Struktur aufweist. Erfindungsgemäß einsetzbare NaSICON-Strukturen sind außerdem beispielsweise beschrieben

35 von N. Anantharamulu, K. Koteswara Rao, G. Rambabu, B. Vijaya Kumar, Velchuri Radha, M. Vithal, *J Mater Sci* **2011**, 46, 2821-2837.

In einer bevorzugten Ausführungsform der Trennwand **W** weisen die von der Trennwand **W** umfassten alkalikationenleitende Festelektrolytkeramiken unabhängig voneinander eine NaSICON-Struktur der Formel  $M^I_{1+2w+x-y+z} M^{II}_w M^{III}_x Zr^{IV}_{2-w-x-y} M^V_y (SiO_4)_z (PO_4)_{3-z}$  auf.

- 5  $M^I$  ist dabei ausgewählt aus  $Na^+$ ,  $Li^+$ , bevorzugt  $Na^+$ .  
 $M^{II}$  ist dabei ein zweiwertiges Metallkation, bevorzugt ausgewählt aus  $Mg^{2+}$ ,  $Ca^{2+}$ ,  $Sr^{2+}$ ,  $Ba^{2+}$ ,  $Co^{2+}$ ,  $Ni^{2+}$ , bevorzugter ausgewählt aus  $Co^{2+}$ ,  $Ni^{2+}$ .  
 $M^{III}$  ist dabei ein dreiwertiges Metallkation, bevorzugt ausgewählt aus  $Al^{3+}$ ,  $Ga^{3+}$ ,  $Sc^{3+}$ ,  $La^{3+}$ ,  $Y^{3+}$ ,  $Gd^{3+}$ ,  $Sm^{3+}$ ,  $Lu^{3+}$ ,  $Fe^{3+}$ ,  $Cr^{3+}$ , bevorzugter ausgewählt aus  $Sc^{3+}$ ,  $La^{3+}$ ,  $Y^{3+}$ ,  $Gd^{3+}$ ,  $Sm^{3+}$ , besonders  
10 bevorzugt ausgewählt aus  $Sc^{3+}$ ,  $Y^{3+}$ ,  $La^{3+}$ .  
 $M^V$  ist dabei ein fünfwertiges Metallkation, bevorzugt ausgewählt aus  $V^{5+}$ ,  $Nb^{5+}$ ,  $Ta^{5+}$ .

Die römischen Indizes I, II, III, IV, V geben die Oxidationszahlen an, in der die jeweiligen Metallkationen vorliegen.

- 15  $w$ ,  $x$ ,  $y$ ,  $z$  sind reelle Zahlen, wobei gilt, dass  $0 \leq x < 2$ ,  $0 \leq y < 2$ ,  $0 \leq w < 2$ ,  $0 \leq z < 3$ ,  
und wobei  $w$ ,  $x$ ,  $y$ ,  $z$  so gewählt werden, dass gilt  $1 + 2w + x - y + z \geq 0$  und  $2 - w - x - y \geq 0$ .

- Die NaSICON-Struktur hat dabei erfindungsgemäß noch bevorzugter eine Struktur der Formel  
20  $Na_{(1+v)}Zr_2Si_vP_{(3-v)}O_{12}$ , wobei  $v$  eine reelle Zahl ist, für die  $0 \leq v \leq 3$  gilt. Am bevorzugtesten gilt  $v = 2.4$

In einer bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens weisen die von der Trennwand **W** umfassten alkalikationenleitenden Festelektrolytkeramiken die gleiche Struktur auf.

#### 25 4.1.1.3 Kathodische Elektrode $E_K$

- Die Kathodenkammer  $K_K$  umfasst einen Innenraum  $I_{KK}$ , der wiederum eine kathodische Elektrode  $E_K$  umfasst. Als solche kathodische Elektrode  $E_K$  kommt jede dem Fachmann geläufige Elektrode  
in Frage, die unter den Bedingungen des erfindungsgemäßen Verfahrens stabil ist. Solche sind  
30 insbesondere in WO 2014/008410 A1, Absatz [025] oder DE 10360758 A1, Absatz [030]  
beschrieben. Diese Elektrode  $E_K$  kann aus der Gruppe bestehend aus Maschenwolle,  
dreidimensionale Matrixstruktur oder „Kugeln“ ausgewählt sein. Die kathodische Elektrode  $E_K$   
umfasst insbesondere ein Material, welches ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus Stahl,  
Nickel, Kupfer, Platin, platinierter Metalle, Palladium, auf Kohle geträgertes Palladium, Titan.  
35 Bevorzugt umfasst  $E_K$  Nickel.

#### 4.1.1.4 Zulauf $Z_{KK}$ und Ablauf $A_{KK}$

Die Kathodenkammer  $K_K$  umfasst auch einen Zulauf  $Z_{KK}$  und einen Ablauf  $A_{KK}$ . Dies ermöglicht es,  
dem Innenraum  $I_{KK}$  der Kathodenkammer  $K_K$  Flüssigkeit, wie zum Beispiel die Lösung  $L_2$ ,

zuzufügen und darin befindliche Flüssigkeit, wie zum Beispiel die Lösung  $L_1$ , zu entfernen. Der Zulauf  $Z_{KK}$  und der Ablauf  $A_{KK}$  sind dabei so an der Kathodenkammer  $K_K$  angebracht, dass die Flüssigkeit beim Durchströmen des Innenraums  $I_{KK}$  der Kathodenkammer  $K_K$  die kathodische Elektrode  $E_K$  kontaktiert. Dies ist die Voraussetzung dafür, dass bei der Durchführung des

5 erfindungsgemäßen Verfahrens am Ablauf  $A_{KK}$  die Lösung  $L_1$  erhalten wird, wenn die Lösung  $L_2$  eines Alkalialkoholats XOR im Alkohol ROH durch den Innenraum  $I_{KK}$  der Kathodenkammer  $K_K$  geleitet wird.

Der Zulauf  $Z_{KK}$  und der Ablauf  $A_{KK}$  können nach dem Fachmann bekannten Verfahren an der

10 Elektrolysezelle  $E$  angebracht werden, z.B. durch Bohrungen im Behältnisteil  $B_{EK}$  bzw. dem Oberseitenteil  $O_{EK}$  und entsprechenden Anschlüssen (Ventilen), die die Ein- bzw. Ausleitung von Flüssigkeit vereinfachen.

Erfindungswesentlich ist der Ablauf  $A_{KK}$  an  $O_{EK}$  angeordnet.

#### 15 4.1.2 Anodenkammer $K_A$

Die Anodenkammer  $K_A$  weist mindestens einen Zulauf  $Z_{KA}$ , mindestens einen Ablauf  $A_{KA}$  und einem Innenraum  $I_{KA}$ , der eine anodische Elektrode  $E_A$  umfasst, auf. Der Innenraum  $I_{KA}$  wird durch einen Teil  $O_{EA}$  der Oberseite  $O_E$  und einen Teil  $B_{EA}$  des Behältnisses  $B_E$  begrenzt. Demnach wird

20 der Teil der Oberseite  $O_E$ , der  $I_{KA}$  begrenzt, als  $O_{EA}$  bezeichnet, und der Teil des Behältnisses  $B_E$ , der  $I_{KA}$  begrenzt, als  $B_{EA}$  bezeichnet.

Der Innenraum  $I_{KA}$  der Anodenkammer  $K_A$  ist durch eine Diffusionsbarriere  $D$  vom Innenraum  $I_{KM}$  der Mittelkammer  $K_M$  abgetrennt.

25

##### *4.1.2.1 Anodische Elektrode $E_A$*

Die Anodenkammer  $K_A$  umfasst einen Innenraum  $I_{KA}$ , der wiederum eine anodische Elektrode  $E_A$  umfasst. Als solche anodische Elektrode  $E_A$  kommt jede dem Fachmann geläufige Elektrode in

30 Frage, die unter den Bedingungen des erfindungsgemäßen Verfahrens stabil ist. Solche sind insbesondere in WO 2014/008410 A1, Absatz [024] oder DE 10360758 A1, Absatz [031] beschrieben. Diese Elektrode  $E_A$  kann aus einer Schicht bestehen oder aus mehreren planen, zueinander parallelen Schichten bestehen, die jeweils perforiert oder expandiert sein können. Die anodische Elektrode  $E_A$  umfasst insbesondere ein Material, welches ausgewählt ist aus der

35 Gruppe bestehend aus Rutheniumoxid, Iridiumoxid, Nickel, Kobalt, Nickelwolframat, Nickeltitanat, Edelmetalle wie insbesondere Platin, welches auf einem Träger wie Titan oder Kovar® (einer Eisen/Nickel/Kobalt-Legierung, in denen die einzelnen Anteile bevorzugt wie folgt sind: 54 Massen-% Eisen, 29 Massen-% Nickel, 17 Massen-% Cobalt) geträgert ist. Weitere mögliche Anodenmaterialien sind insbesondere Edelstahl, Blei, Graphit, Wolframcarbid, Titandiborid.

Bevorzugt umfasst die anodische Elektrode  $E_A$  eine mit Rutheniumoxid/ Iridiumoxid beschichtete Titananode ( $RuO_2 + IrO_2 / Ti$ ).

#### 4.1.2.2 Zulauf $Z_{KA}$ und Ablauf $A_{KA}$

- 5 Die Anodenkammer  $K_A$  umfasst auch einen Zulauf  $Z_{KA}$  und einen Ablauf  $A_{KA}$ . Dies ermöglicht es, dem Innenraum  $I_{KA}$  der Anodenkammer  $K_A$  Flüssigkeit, wie zum Beispiel die Lösung  $L_3$ , zuzufügen und darin befindliche Flüssigkeit, wie zum Beispiel die Lösung  $L_4$ , zu entfernen. Der Zulauf  $Z_{KA}$  und der Ablauf  $A_{KA}$  sind dabei so an der Anodenkammer  $K_A$  angebracht, dass die Flüssigkeit beim Durchströmen des Innenraums  $I_{KA}$  der Anodenkammer  $K_A$  die anodische Elektrode  $E_A$  kontaktiert.
- 10 Dies ist die Voraussetzung dafür, dass bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens am Ablauf  $A_{KA}$  die Lösung  $L_4$  erhalten wird, wenn die Lösung  $L_3$  eines Salzes  $S$  durch den Innenraum  $I_{KA}$  der Anodenkammer  $K_A$  geleitet wird.

- Der Zulauf  $Z_{KA}$  und der Ablauf  $A_{KA}$  können nach dem Fachmann bekannten Verfahren an der Elektrolysezelle  $E$  angebracht werden, z.B. durch Bohrungen im Behältnisteil  $B_{EA}$  bzw. dem Oberseitenteil  $O_{EA}$  und entsprechenden Anschlüssen (Ventilen), die die Ein- bzw. Ausleitung von Flüssigkeit vereinfachen. Der Zulauf  $Z_{KA}$  kann in bestimmten Ausführungsformen, in denen die Elektrolysezelle  $E$  eine Mittelkammer  $K_M$  umfasst, auch innerhalb der Elektrolysezelle liegen, beispielsweise als Perforation in der Diffusionsbarriere  $D$ .

20

Erfindungswesentlich ist der Ablauf  $A_{KA}$  an  $O_{EA}$  angeordnet.

#### 4.1.3 Mittelkammer $K_M$

- Die Elektrolysezelle  $E$  weist eine Mittelkammer  $K_M$  auf. Die Mittelkammer  $K_M$  liegt zwischen Kathodenkammer  $K_K$  und Anodenkammer  $K_A$ . Sie umfasst mindestens einen Zulauf  $Z_{KM}$ , mindestens einen Ablauf  $A_{KM}$  und einen Innenraum  $I_{KM}$ . Der Innenraum  $I_{KM}$  wird durch einen Teil  $O_{EM}$  der Oberseite  $O_E$  und einen Teil  $B_{EM}$  des Behältnisses  $B_E$  begrenzt. Demnach wird der Teil der Oberseite  $O_E$ , der  $I_{KM}$  begrenzt, als  $O_{EM}$  bezeichnet, und der Teil des Behältnisses  $B_E$ , der  $I_{KM}$  begrenzt, als  $B_{EM}$  bezeichnet.

30

Der Innenraum  $I_{KA}$  der Anodenkammer  $K_A$  ist durch eine Diffusionsbarriere  $D$  vom Innenraum  $I_{KM}$  der Mittelkammer  $K_M$  abgetrennt.  $A_{KM}$  ist außerdem durch eine Verbindung  $V_{AM}$  mit dem Zulauf  $Z_{KA}$  verbunden, so dass durch die Verbindung  $V_{AM}$  Flüssigkeit aus  $I_{KM}$  in  $I_{KA}$  geleitet werden kann.

#### 4.1.3.1 Diffusionsbarriere $D$

35

Der Innenraum  $I_{KM}$  der Mittelkammer  $K_M$  ist durch eine Diffusionsbarriere  $D$  vom Innenraum  $I_{KA}$  der Anodenkammer  $K_A$  abgetrennt und durch die Trennwand  $W$  vom Innenraum  $I_{KK}$  der Kathodenkammer  $K_K$  abgetrennt.

Für die Diffusionsbarriere **D** kann jedes Material genutzt werden, welches unter den Bedingungen des erfindungsgemäßen Verfahrens stabil ist und den Übergang von Protonen von der im Innenraum  $I_{KA}$  der Anodenkammer  $K_A$  befindlichen Flüssigkeit in den Innenraum  $I_{KM}$  der Mittelkammer  $K_M$  verhindert oder verlangsamt.

Als Diffusionsbarriere **D** wird insbesondere eine nicht ionenspezifische Trennwand oder eine für spezifische Ionen durchlässige Membran verwendet. Bevorzugt handelt es sich bei der Diffusionsbarriere **D** um eine nicht ionenspezifische Trennwand.

Das Material der nicht ionenspezifischen Trennwand ist insbesondere aus der Gruppe bestehend aus Gewebe, wobei es sich insbesondere um textiles Gewebe oder Metallgewebe handelt, Glas, wobei es sich insbesondere um gesintertes Glas oder Glasfritten handelt, Keramik, insbesondere keramische Fritten, Membrandiaphragmas ausgewählt, und ist besonders bevorzugt ein textiles Gewebe oder Metallgewebe, besonders bevorzugt ein textiles Gewebe. Das textile Gewebe umfasst bevorzugt Kunststoff, bevorzugter einen Kunststoff ausgewählt aus PVC, PVC-C, Polyvinylether („PVE“), Polytetrafluorethylen („PTFE“).

Handelt es sich bei der Diffusionsbarriere **D** um eine „für spezifische Ionen durchlässige Membran“, so bedeutet dies erfindungsgemäß, dass die jeweilige Membran die Diffusion bestimmter Ionen durch sie hindurch gegenüber anderen Ionen begünstigt. Insbesondere sind damit Membranen gemeint, die die Diffusion durch sie hindurch von Ionen einer bestimmten Ladungsart gegenüber entgegengesetzt geladenen Ionen begünstigen. Noch bevorzugter begünstigen für spezifische Ionen durchlässige Membranen außerdem die Diffusion bestimmter Ionen mit einer Ladungsart gegenüber anderen Ionen derselben Ladungsart durch sie hindurch.

Ist die Diffusionsbarriere **D** eine „für spezifische Ionen durchlässige Membran“, handelt es sich insbesondere bei der Diffusionsbarriere **D** um eine anionenleitende Membran oder um eine kationenleitende Membran.

Anionenleitende Membranen sind erfindungsgemäß solche, die selektiv Anionen, bevorzugt selektiv bestimmte Anionen leiten. In anderen Worten begünstigen sie die Diffusion von Anionen durch sie hindurch gegenüber der von Kationen, insbesondere gegenüber Protonen, noch bevorzugter begünstigen sie zusätzlich die Diffusion von bestimmten Anionen durch sie hindurch gegenüber der Diffusion anderer Anionen durch sie hindurch.

Kationenleitende Membranen sind erfindungsgemäß solche, die selektiv Kationen, bevorzugt selektiv bestimmte Kationen leiten. In anderen Worten begünstigen sie die Diffusion von Kationen durch sie hindurch gegenüber der von Anionen, noch bevorzugter begünstigen sie zusätzlich die Diffusion von bestimmten Kationen, durch sie hindurch gegenüber der Diffusion anderer Kationen

durch sie hindurch, noch viel mehr bevorzugter von Kationen, bei denen es sich nicht um Protonen handelt, noch bevorzugter um Natriumkationen handelt, gegenüber Protonen.

5 „Begünstigen die Diffusion bestimmter Ionen X gegenüber der Diffusion anderer Ionen Y“ bedeutet insbesondere, dass der Diffusionskoeffizient (Einheit  $\text{m}^2/\text{s}$ ) der Ionenart X bei einer gegebenen Temperatur für die betreffende Membran um den Faktor 10, bevorzugt 100, bevorzugt 1000 höher ist als der Diffusionskoeffizient der Ionenart Y für die betreffende Membran.

10 Handelt es sich bei der Diffusionsbarriere **D** um eine „für spezifische Ionen durchlässige Membran“, so ist es bevorzugt eine anionenleitende Membran, denn diese verhindert besonders gut die Diffusion von Protonen aus der Anodenkammer  $K_A$  in die Mittelkammer  $K_M$ .

15 Als anionenleitende Membran wird insbesondere eine solche eingesetzt, die für die vom Salz **S** umfassten Anionen selektiv ist. Solche Membranen sind dem Fachmann bekannt und können von ihm eingesetzt werden.

Das Salz **S** ist bevorzugt ein Halogenid, Sulfat, Sulfit, Nitrat, Hydrogencarbonat oder Carbonat von X, noch bevorzugter ein Halogenid.

20 Halogenide sind Fluoride, Chloride, Bromide, Jodide. Das bevorzugteste Halogenid ist Chlorid.

Bevorzugt wird als anionenleitende Membran eine für Halogenide, bevorzugt Chlorid, selektive Membran eingesetzt.

25 Anionenleitende Membranen sind beispielsweise von M.A. Hickner, A.M. Herring, E.B. Coughlin, Journal of Polymer Science, Part B: Polymer Physics **2013**, 51, 1727-1735, von C.G. Arges, V. Ramani, P.N. Pintauro, Electrochemical Society Interface **2010**, 19, 31-35, in WO 2007/048712 A2 sowie auf Seite 181 des Lehrbuchs von Volkmar M. Schmidt Elektrochemische Verfahrenstechnik: Grundlagen, Reaktionstechnik, Prozessoptimierung, 1. Auflage (8. Oktober 2003) beschrieben.

30 Noch bevorzugter werden demnach als anionenleitende Membran organische Polymere, welche insbesondere aus Polyethylen, Polybenzimidazolen, Polyetherketonen, Polystyrol, Polypropylen oder fluorierten Membranen wie Polyperfluorethylen, bevorzugt Polystyrol, ausgewählt sind, eingesetzt, wobei diese kovalent gebunden funktionelle Gruppen ausgewählt aus  $-\text{NH}_3^+$ ,  $-\text{NRH}_2^+$ ,  
35  $-\text{NR}_3^+$ ,  $=\text{NR}^+$ ,  $-\text{PR}_3^+$ , wobei es sich bei R um Alkylgruppen mit bevorzugt 1 bis 20 Kohlenstoffatomen handelt, oder andere kationische Gruppen aufweisen. Bevorzugt weisen sie kovalent gebundene funktionelle Gruppen, ausgewählt aus  $-\text{NH}_3^+$ ,  $-\text{NRH}_2^+$ ,  $-\text{NR}_3^+$ , bevorzugter ausgewählt aus  $-\text{NH}_3^+$ ,  $-\text{NR}_3^+$ , noch bevorzugter  $-\text{NR}_3^+$ , auf.

Wenn die Diffusionsbarriere **D** eine kationenleitende Membran ist, handelt es sich insbesondere um eine Membran, die für die vom Salz **S** umfassten Kationen selektiv ist. Noch bevorzugter ist die Diffusionsbarriere **D** eine alkalikationenleitende Membran, noch mehr bevorzugter eine kalium- und/oder natriumionenleitende Membran, am bevorzugtesten eine natriumionenleitende Membran.

5

Kationenleitende Membranen sind beispielsweise beschrieben auf Seite 181 des Lehrbuchs von Volkmar M. Schmidt Elektrochemische Verfahrenstechnik: Grundlagen, Reaktionstechnik, Prozessoptimierung, 1. Auflage (8. Oktober 2003).

10

Noch bevorzugter werden demnach als kationenleitende Membran organische Polymere, welche insbesondere aus Polyethylen, Polybenzimidazolen, Polyetherketonen, Polystyrol, Polypropylen oder fluorierten Membranen wie Polyperfluorethylen, bevorzugt Polystyrol, Polyperfluorethylen, ausgewählt sind, eingesetzt, wobei diese kovalent gebunden funktionelle Gruppen ausgewählt aus -SO<sub>3</sub><sup>-</sup>, -COO<sup>-</sup>, -PO<sub>3</sub><sup>2-</sup>, -PO<sub>2</sub>H<sup>-</sup>, bevorzugt -SO<sub>3</sub><sup>-</sup>, (beschrieben in DE 10 2010 062 804 A1,

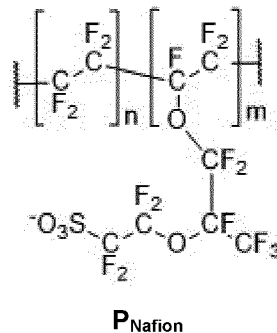
15

US 4,831,146) tragen.

Dies kann zum Beispiel ein sulfoniertes Polyperfluorethylen (Nafion<sup>®</sup> mit CAS-Nummer: 31175-20-9) sein. Diese sind dem Fachmann beispielsweise aus der WO 2008/076327 A1, Absatz [058], US 2010/0044242 A1, Absatz [0042] oder der US 2016/ 0204459 A1 bekannt und unter dem Handelsnamen Nafion<sup>®</sup>, Aciplex<sup>®</sup> F, Flemion<sup>®</sup>, Neosepta<sup>®</sup>, Ultrex<sup>®</sup>, PC-SK<sup>®</sup> erwerblich. Neosepta<sup>®</sup>-Membranen sind beispielsweise beschrieben von S.A. Mareev, D.Yu. Butylskii, N.D. Pismenskaya, C. Larchet, L. Dammak, V.V. Nikonenko, Journal of Membrane Science **2018**, 563, 768-776.

25

Wird eine kationenleitende Membran als Diffusionsbarriere **D** eingesetzt, kann dies beispielsweise ein mit Sulfonsäuregruppen funktionalisiertes Polymer, insbesondere der folgenden Formel **P<sub>NAFION</sub>**, wobei n und m unabhängig voneinander eine ganze Zahl von 1 bis 10<sup>6</sup>, bevorzugter eine ganze Zahl von 10 bis 10<sup>5</sup>, noch bevorzugter eine ganze Zahl von 10<sup>2</sup> bis 10<sup>4</sup> ist, sein.



30

#### 4.1.3.2 Zulauf **Z<sub>KM</sub>** und Ablauf **A<sub>KM</sub>**

Die Mittelkammer **K<sub>M</sub>** umfasst auch einen Zulauf **Z<sub>KM</sub>** und einen Ablauf **A<sub>KM</sub>**. Dies ermöglicht es, dem Innenraum **I<sub>KM</sub>** der Mittelkammer **K<sub>M</sub>** Flüssigkeit, wie zum Beispiel die Lösung **L<sub>3</sub>**, zuzufügen,

und darin befindliche Flüssigkeit, wie zum Beispiel die Lösung  $L_3$ , in die Anodenkammer  $K_A$  zu überführen.

5 Der Zulauf  $Z_{KM}$  und der Ablauf  $A_{KM}$  können nach dem Fachmann bekannten Verfahren an der Elektrolysezelle  $E$  angebracht werden, z.B. durch Bohrungen im Behältnisteil  $B_{EM}$  bzw. dem Oberseitenteil  $O_{EM}$  und entsprechenden Anschlüssen (Ventilen), die die Ein- bzw. Ausleitung von Flüssigkeit vereinfachen. Der Ablauf  $A_{KM}$  kann auch innerhalb der Elektrolysezelle liegen, beispielsweise als Perforation in der Diffusionsbarriere  $D$ .

#### 4.1.3.3 Verbindung $V_{AM}$

10

In der Elektrolysezelle  $E$  ist der Ablauf  $A_{KM}$  durch eine Verbindung  $V_{AM}$  mit dem Zulauf  $Z_{KA}$  so verbunden, dass durch die Verbindung  $V_{AM}$  Flüssigkeit aus  $I_{KM}$  in  $I_{KA}$  geleitet werden kann,

15

Die Verbindung  $V_{AM}$  kann innerhalb der Elektrolysezelle  $E$  und/oder außerhalb der Elektrolysezelle  $E$  ausgebildet sein, und ist bevorzugt innerhalb der Elektrolysezelle ausgebildet.

20

1) Ist die Verbindung  $V_{AM}$  innerhalb der Elektrolysezelle  $E$  ausgebildet, wird sie bevorzugt durch mindestens eine Perforation in der Diffusionsbarriere  $D$  gebildet. Diese Ausführungsform ist insbesondere dann bevorzugt, wenn als Diffusionsbarriere  $D$  eine nicht ionenspezifische Trennwand, insbesondere ein Metallgewebe oder textiles Gewebe eingesetzt wird. Dieses fungiert als Diffusionsbarriere  $D$  und weist aufgrund der Webeigenschaften von vorneherein Perforationen und Lücken auf, die als Verbindung  $V_{AM}$  fungieren.

25

2) Die folgend beschriebene Ausführungsform ist insbesondere dann bevorzugt, wenn als Diffusionsbarriere  $D$  eine für spezifische Ionen durchlässige Membran eingesetzt wird: In dieser Ausführungsform ist die Verbindung  $V_{AM}$  außerhalb der Elektrolysezelle  $E$  ausgebildet, wobei sie bevorzugt durch eine außerhalb der Elektrolysezelle  $E$  verlaufende Verbindung von  $A_{KM}$  und  $Z_{KA}$  gebildet wird, insbesondere dadurch, dass vom Innenraum der Mittelkammer  $I_{KM}$  ein Ablauf  $A_{KM}$ , bevorzugt am Boden der Mittelkammer  $K_M$ , wobei noch bevorzugter der Zulauf  $Z_{KM}$  an der Oberseite  $O_{EM}$  der Mittelkammer  $K_M$  ist, gebildet wird, und ein Zulauf  $Z_{KA}$  in den Innenraum  $I_{KA}$  der Anodenkammer  $K_A$ , bevorzugt am Boden der Anodenkammer  $K_A$ , gebildet wird, und diese durch eine Leitung, beispielsweise ein Rohr oder ein Schlauch, der bevorzugt ein Material ausgewählt aus Gummi, Kunststoff umfasst, verbunden sind. Dies ist insbesondere deshalb vorteilhaft, da der Ablauf  $A_{KA}$  erfindungsgemäß an der Oberseite  $O_{EA}$  der Anodenkammer  $K_A$  ausgebildet.

35

„Ablauf  $A_{KM}$  am Boden der Mittelkammer  $K_M$ “ bedeutet insbesondere, dass der Ablauf  $A_{KM}$  so an der Elektrolysezelle  $E$  angebracht ist, dass die Lösung  $L_3$  die Mittelkammer  $K_M$  gleichgerichtet mit der Schwerkraft verlässt.

„Zulauf  $Z_{KA}$  am Boden der Anodenkammer  $K_A$ “ bedeutet insbesondere, dass der Zulauf  $Z_{KA}$  so an der Elektrolysezelle  $E$  angebracht ist, dass die Lösung  $L_3$  in die Anodenkammer  $K_A$  entgegen der Schwerkraft eintritt.

- 5 „Zulauf  $Z_{KM}$  an der Oberseite  $O_{EM}$  der Mittelkammer  $K_M$ “ bedeutet insbesondere, dass der Zulauf  $Z_{KM}$  so an der Elektrolysezelle  $E$  angebracht ist, dass die Lösung  $L_3$  in die Mittelkammer  $K_M$  gleichgerichtet mit der Schwerkraft eintritt.

- 10 „Ablauf  $A_{KA}$  an der Oberseite  $O_{EA}$  der Anodenkammer  $K_A$ “ bedeutet insbesondere, dass der Ablauf  $A_{KA}$  so an der Elektrolysezelle  $E$  angebracht ist, dass die Lösung  $L_4$  die Anodenkammer  $K_A$  entgegen der Schwerkraft verlässt.

15 Diese Ausführungsform ist dabei besonders vorteilhaft und deshalb bevorzugt, wenn der Ablauf  $A_{KM}$  durch den Boden der Mittelkammer  $K_M$ , und der Zulauf  $Z_{KA}$  durch den Boden der Anodenkammer  $K_A$ , ausgebildet wird. Durch diese Anordnung ist es besonders einfach möglich, in der Anodenkammer  $K_A$  gebildete Gase mit  $L_4$  aus der Anodenkammer  $K_A$  abzuleiten, um diese dann weiter abzutrennen.

20 Wenn die Verbindung  $V_{AM}$  außerhalb der Elektrolysezelle  $E$  ausgebildet ist, sind insbesondere  $Z_{KM}$  und  $A_{KM}$  an gegenüberliegenden Seiten der Außenwand  $W_A$  der Mittelkammer  $K_M$  angeordnet (also z.B.  $Z_{KM}$  am Boden und  $A_{KM}$  an der Oberseite  $O_{EM}$  der Elektrolysezelle  $E$  oder umgekehrt) und  $Z_{KA}$  und  $A_{KA}$  an gegenüberliegenden Seiten der Außenwand  $W_A$  der Anodenkammer  $K_A$  angeordnet (also  $Z_{KA}$  am Boden und  $A_{KA}$  an der Oberseite  $O_{EA}$  der Elektrolysezelle  $E$ ), wie es insbesondere in Abbildungen 2 A, 2 B, 5 und 8 gezeigt ist. Durch diese Geometrie muss  $L_3$  die beiden Kammern  $K_M$  und  $K_A$  durchströmen. Dabei können  $Z_{KA}$  und  $Z_{KM}$  an derselben Seite der Elektrolysezelle  $E$  ausgebildet sein, wobei dann automatisch auch  $A_{KM}$  und  $A_{KA}$  an derselben Seite der Elektrolysezelle  $E$  ausgebildet sind, wie z.B. in der Ausführungsform gemäß Fig. 8 gezeigt. Alternativ können  $Z_{KA}$  und  $Z_{KM}$  an gegenüberliegenden Seiten der Elektrolysezelle  $E$  ausgebildet sein, wobei dann automatisch auch  $A_{KM}$  und  $A_{KA}$  an gegenüberliegenden Seiten der Elektrolysezelle  $E$  ausgebildet sind, wie z.B. in den Ausführungsformen gemäß Fig. 2A, 2B und 5 gezeigt.

3) Wenn die Verbindung  $V_{AM}$  innerhalb der Elektrolysezelle  $E$  ausgebildet ist, kann dies insbesondere dadurch gewährleistet werden, dass eine Seite („Seite A“) der Elektrolysezelle  $E$ , bei der es sich um die Oberseite  $O_E$  handelt, den Zulauf  $Z_{KM}$  und den Ablauf  $A_{KA}$  umfasst und die Diffusionsbarriere  $D$  ausgehend von dieser Seite („Seite A“) sich in die Elektrolysezelle  $E$  erstreckt, aber nicht ganz bis zur der Seite A gegenüberliegenden Seite („Seite B“) der Elektrolysezelle  $E$ , bei der es dann sich um den Boden der Elektrolysezelle  $E$  handelt, reicht und dabei 50 % oder mehr der Höhe der Dreikammerzelle  $E$ , bevorzugter 60 % bis 99 % der Höhe der Dreikammerzelle  $E$ , noch bevorzugter 70 % bis 95 % der Höhe der Dreikammerzelle  $E$ , noch mehr bevorzugter 80 %

bis 90 % der Höhe der Dreikammerzelle **E**, noch viel mehr bevorzugter 85 % der Höhe der Dreikammerzelle **E** durchspannt. Dadurch dass die Diffusionsbarriere **D** die Seite B der Dreikammerzelle **E** nicht berührt, entsteht so ein Spalt zwischen Diffusionsbarriere **D** und dem Behältnis **B<sub>E</sub>** auf Seite B der Dreikammerzelle **E**. Der Spalt ist dann die Verbindung **V<sub>AM</sub>**. Durch diese Geometrie muss **L<sub>3</sub>** die beiden Kammern **K<sub>M</sub>** und **K<sub>A</sub>** vollständig durchströmen.

Diese Ausführungsformen gewährleisten am besten, dass am säureempfindlichen Festelektrolyten die wässrige Salzlösung **L<sub>3</sub>** vorbeiströmt, bevor diese mit der anodischen Elektrode **E<sub>A</sub>** in Kontakt kommt, wodurch es zur Bildung von Säuren kommt.

„Boden der Elektrolysezelle **E**“ ist erfindungsgemäß die Seite der Elektrolysezelle **E**, durch die eine Lösung (z.B. **L<sub>3</sub>** bei **A<sub>KM</sub>** in Abbildung 2 A) gleichgerichtet mit der Schwerkraft aus der Elektrolysezelle **E** austritt bzw. die Seite der Elektrolysezelle **E**, durch die eine Lösung (z.B. **L<sub>2</sub>** bei **Z<sub>KK</sub>** in Abbildungen 2 A und 3 A und **L<sub>3</sub>** bei **A<sub>KA</sub>** in Abbildung 2 A) der Elektrolysezelle **E** entgegen der Schwerkraft zugeführt wird.

„Oberseite **O<sub>E</sub>** der Elektrolysezelle **E**“ ist erfindungsgemäß die Seite der Elektrolysezelle **E**, durch die eine Lösung (z.B. **L<sub>4</sub>** bei **A<sub>KA</sub>** und **L<sub>1</sub>** bei **A<sub>KK</sub>** in allen Abbildungen) entgegen der Schwerkraft aus der Elektrolysezelle **E** austritt bzw. die Seite der Elektrolysezelle **E**, durch die eine Lösung (z.B. **L<sub>3</sub>** bei **Z<sub>KM</sub>** in Abbildungen 2 A, 2 B, 3 A, 3 B und 5) der Elektrolysezelle **E** gleichgerichtet mit der Schwerkraft zugeführt wird.

#### 4.1.4 Anordnung der Trennwand **W** in der Elektrolysezelle **E**

Die Trennwand **W** ist in der Elektrolysezelle **E** so angeordnet, dass die von der Trennwand **W** umfassten alkalikationenleitenden Festelektrolytkeramiken den Innenraum **I<sub>KK</sub>** auf der Seite **S<sub>KK</sub>** direkt kontaktieren.

Dies bedeutet, dass die Trennwand **W** in der Elektrolysezelle **E** so angeordnet ist, dass, wenn der Innenraum **I<sub>KK</sub>** auf der Seite **S<sub>KK</sub>** mit Lösung **L<sub>4</sub>** vollständig gefüllt ist, dass die Lösung **L<sub>4</sub>** alle von der Trennwand **W** umfassten alkalikationenleitenden Festelektrolytkeramiken kontaktiert, so dass Ionen (z.B. Alkalimetallionen wie Natrium, Lithium) aus allen alkalikationenleitenden Festelektrolytkeramiken, die von der Trennwand **W** umfasst werden, in die Lösung **L<sub>4</sub>** eintreten können.

Zusätzlich ist die Trennwand **W** so in der Elektrolysezelle **E** angeordnet, dass die von der Trennwand **W** umfassten alkalikationenleitenden Festelektrolytkeramiken den Innenraum **I<sub>KM</sub>** direkt kontaktieren.

Dies bedeutet Folgendes: es grenzt die Trennwand **W** an den Innenraum **I<sub>KM</sub>** der Mittelkammer **K<sub>M</sub>**. Die Trennwand **W** ist in der Elektrolysezelle **E** so angeordnet, dass, wenn der Innenraum **I<sub>KM</sub>** mit Lösung **L<sub>3</sub>** vollständig gefüllt ist, dass die Lösung **L<sub>3</sub>** dann alle von der der Trennwand **W** umfassten alkalikationenleitenden Festelektrolytkeramiken kontaktiert, so dass Ionen (z.B. Alkalimetallionen wie Natrium, Lithium) aus der Lösung **L<sub>3</sub>** in jede alkalikationenleitende Festelektrolytkeramik, die von der Trennwand **W** umfasst ist, eintreten können.

#### 4.2 Erfindungsgemäße Verfahrensschritte

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung einer Lösung **L<sub>1</sub>** eines Alkalimetallalkoholats XOR im Alkohol ROH, wobei X ein Alkalimetallkation ist und R ein Alkylrest mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen ist. Das Verfahren wird in einer Elektrolysezelle **E** durchgeführt.

Bevorzugt ist X aus der Gruppe bestehend aus Li<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, bevorzugter aus der Gruppe bestehend aus K<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup> ausgewählt. Am bevorzugtesten ist X = Na<sup>+</sup>.

R ist bevorzugt aus der Gruppe bestehend aus *n*-Propyl, *iso*-Propyl, Ethyl, Methyl ausgewählt, bevorzugter aus der Gruppe bestehend aus Ethyl, Methyl ausgewählt. Am bevorzugtesten ist R Methyl.

Im erfindungsgemäßen Verfahren werden die gleichzeitig ablaufenden Schritte (β1), (β2), (β3) durchgeführt.

Die Elektrolysezelle **E** umfasst mindestens eine Mittelkammer **K<sub>M</sub>**, und es werden die gleichzeitig ablaufenden Schritte (β1), (β2), (β3) durchgeführt.

##### 4.2.1 Schritt (β1)

Im Schritt (β1) wird eine Lösung **L<sub>2</sub>** umfassend den Alkohol ROH, bevorzugt umfassend ein Alkalialkoholat XOR und Alkohol ROH, durch **I<sub>KK</sub>** geleitet.

Die Lösung **L<sub>2</sub>** ist bevorzugt frei von Wasser. „Frei von Wasser“ bedeutet erfindungsgemäß, dass das Gewicht des Wassers in der Lösung **L<sub>2</sub>** bezogen auf das Gewichts des Alkohols ROH in der Lösung **L<sub>2</sub>** (Massenverhältnis)  $\leq 1 : 10$ , bevorzugter  $\leq 1 : 20$ , noch bevorzugter  $\leq 1 : 100$ , noch bevorzugter  $\leq 0.5 : 100$  ist.

Umfasst die Lösung **L<sub>2</sub>** XOR, so liegt der Massenanteil von XOR in der Lösung **L<sub>2</sub>**, bezogen auf die gesamte Lösung **L<sub>2</sub>**, insbesondere bei > 0 bis 30 Gew.-%, bevorzugt bei 5 bis 20 Gew.-%, noch bevorzugter bei 10 bis 20 Gew.-%, noch bevorzugter bei 10 bis 15 Gew.-%, am bevorzugtesten bei 13 bis 14 Gew.-%, am allerbevorzugtesten bei 13 Gew.-%.

Umfasst die Lösung  $L_2$  XOR, so liegt in der Lösung  $L_2$  insbesondere das Massenverhältnis von XOR zu Alkohol ROH im Bereich 1 : 100 bis 1 : 5, bevorzugter im Bereich 1 : 25 bis 3 : 20, noch bevorzugter im Bereich 1 : 12 bis 1 : 8, noch bevorzugter bei 1 : 10.

#### 4.2.2 Schritt ( $\beta_2$ )

5

In Schritt ( $\beta_2$ ) wird eine neutrale oder alkalische, wässrige Lösung  $L_3$  eines Salzes  $S$  umfassend X als Kation durch  $I_{KM}$ , dann über  $V_{AM}$ , dann durch  $I_{KA}$  geleitet.

Das Salz  $S$  ist bevorzugt ein Halogenid, Sulfat, Sulfit, Nitrat, Hydrogencarbonat oder Carbonat von X, noch bevorzugter ein Halogenid.

10

Halogenide sind Fluoride, Chloride, Bromide, Jodide. Das bevorzugteste Halogenid ist Chlorid.

Der pH der wässrigen Lösung  $L_3$  ist dabei  $\geq 7.0$ , bevorzugt im Bereich 7 bis 12, bevorzugter im Bereich 8 bis 11, noch bevorzugter 10 bis 11, am bevorzugtesten bei 10.5.

15

Der Massenanteil des Salzes  $S$  in der Lösung  $L_3$  liegt dabei bevorzugt im Bereich  $> 0$  bis 20 Gew.-%, bevorzugt 1 bis 20 Gew.-%, bevorzugter bei 5 bis 20 Gew.-%, noch bevorzugter bei 10 bis 20 Gew.-%, am bevorzugtesten bei 20 Gew.-%, bezogen auf die gesamte Lösung  $L_3$ .

#### 4.2.3 Schritt ( $\beta_3$ )

20

Im Schritt ( $\beta_3$ ) wird dann eine Spannung zwischen  $E_A$  und  $E_K$  angelegt.

Dadurch kommt es zu einem Stromtransport von der Ladungsquelle zur Anode, zu einem Ladungstransport über Ionen zur Kathode und schließlich zu einem Stromtransport zurück zur Ladungsquelle. Die Ladungsquelle ist dem Fachmann bekannt und ist typischerweise ein Gleichrichter, der Wechselstrom in Gleichstrom umwandelt und über Spannungsumwandler bestimmte Spannungen erzeugen kann.

25

Dies hat wiederum folgende Konsequenzen:

30

am Ablauf  $A_{KK}$  wird die Lösung  $L_1$  erhalten, wobei die Konzentration von XOR in  $L_1$  höher ist als in  $L_2$ ,

am Ablauf  $A_{KA}$  wird eine wässrige Lösung  $L_4$  von  $S$  erhalten, wobei die Konzentration von  $S$  in  $L_4$  geringer ist als in  $L_3$ .

35

Im Schritt ( $\beta_3$ ) des Verfahrens wird insbesondere eine solche Spannung angelegt, dass so ein Strom fließt, so dass die Stromdichte (= Verhältnis des Stroms, der zur Elektrolysezelle fließt, zur

Fläche des Festelektrolyten, die den im Innenraum  $I_{KM}$  befindlichen Anolyten kontaktiert) im Bereich von 10 bis 8000 A/ m<sup>2</sup> liegt, bevorzugter im Bereich von 100 bis 2000 A/ m<sup>2</sup> liegt, noch bevorzugter im Bereich von 300 bis 800 A/ m<sup>2</sup>, noch bevorzugter bei 494 A/ m<sup>2</sup> liegt. Dies kann vom Fachmann standardmäßig bestimmt werden. Die Fläche des Festelektrolyten, die den im  
5 Innenraum  $I_{KM}$  der Mittelkammer  $K_M$  befindlichen Anolyten kontaktiert beträgt insbesondere 0.00001 bis 10 m<sup>2</sup>, bevorzugt 0.0001 bis 2.5 m<sup>2</sup>, bevorzugter 0.0002 bis 0.15 m<sup>2</sup>, noch bevorzugter 2.83 cm<sup>2</sup>.

Es versteht sich von selbst, dass der Schritt ( $\beta 3$ ) des Verfahrens dann durchgeführt wird, wenn  
10 beide Innenräume  $I_{KM}$  und  $I_{KA}$  mindestens teilweise mit  $L_3$  beladen sind und  $I_{KK}$  mit  $L_2$  mindestens teilweise beladen ist, so dass sowohl  $L_3$  als auch  $L_2$  die von der Trennwand  $W$  umfassten Festelektrolyten kontaktieren.

Die Tatsache, dass in Schritt ( $\beta 3$ ) ein Ladungstransport zwischen  $E_A$  und  $E_K$  stattfindet, impliziert,  
15 dass  $I_{KK}$ ,  $I_{KM}$  und  $I_{KA}$  gleichzeitig mit  $L_2$  bzw.  $L_3$  so beladen sind, dass sie die Elektroden  $E_A$  und  $E_K$  soweit bedecken, dass der Stromkreislauf geschlossen ist.

Das ist insbesondere dann der Fall, wenn kontinuierlich ein Flüssigkeitsstrom von  $L_3$  durch  $I_{KM}$ ,  $V_{AM}$  und  $I_{KA}$  und ein Flüssigkeitsstrom von  $L_2$  durch  $I_{KK}$  geleitet wird und der Flüssigkeitsstrom von  $L_3$   
20 die Elektrode  $E_A$  und der Flüssigkeitsstrom von  $L_2$  die Elektrode  $E_K$  mindestens teilweise, bevorzugt vollständig bedeckt.

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform wird das Verfahren kontinuierlich durchgeführt, also Schritt ( $\beta 1$ ) und Schritt ( $\beta 2$ ) kontinuierlich durchgeführt und dabei gemäß Schritt ( $\beta 3$ )  
25 Spannung angelegt.

Nach Durchführung des Schrittes ( $\beta 3$ ) wird am Ablauf  $A_{KK}$  die Lösung  $L_1$  erhalten, wobei die Konzentration von XOR in  $L_1$  höher ist als in  $L_2$ . Wenn  $L_2$  schon XOR umfasste, ist die Konzentration von XOR in  $L_1$  bevorzugt um das 1.01 bis 2.2-fache, bevorzugter um das 1.04 bis  
30 1.8-fache, noch bevorzugter um das 1.077 bis 1.4-fache, noch mehr bevorzugter um das 1.077 bis 1.08-fache höher als in  $L_2$ , am bevorzugtesten um das 1.077-fache höher als in  $L_2$ , wobei noch bevorzugter dabei der Massenanteil von XOR in  $L_1$  und in  $L_2$  im Bereich 10 bis 20 Gew.-%, noch mehr bevorzugter 13 bis 14 Gew.-% liegt.

35 Am Ablauf  $A_{KA}$  wird eine wässrige Lösung  $L_4$  von  $S$  erhalten, wobei die Konzentration von  $S$  in  $L_4$  geringer ist als in  $L_3$ .

Die Konzentration des Kations X in der wässrigen Lösung  $L_3$  liegt bevorzugt im Bereich 3.5 bis 5 mol/l, bevorzugter 4 mol/l. Die Konzentration des Kations X in der wässrigen Lösung  $L_4$  ist  
40 bevorzugter 0.5 mol/l geringer als jene der jeweils eingesetzten wässrigen Lösung  $L_3$ .

Insbesondere werden die Schritte ( $\beta 1$ ) bis ( $\beta 3$ ) des Verfahrens bei einer Temperatur von  $20\text{ }^{\circ}\text{C}$  bis  $70\text{ }^{\circ}\text{C}$ , bevorzugt  $35\text{ }^{\circ}\text{C}$  bis  $65\text{ }^{\circ}\text{C}$ , bevorzugter  $35\text{ }^{\circ}\text{C}$  bis  $60\text{ }^{\circ}\text{C}$ , noch bevorzugter  $35\text{ }^{\circ}\text{C}$  bis  $50\text{ }^{\circ}\text{C}$  und einem Druck von  $0.5\text{ bar}$  bis  $1.5\text{ bar}$ , bevorzugt  $0.9\text{ bar}$  bis  $1.1\text{ bar}$ , bevorzugter  $1.0\text{ bar}$  durchgeführt.

Bei der Durchführung der Schritte ( $\beta 1$ ) bis ( $\beta 3$ ) des Verfahrens entsteht im Innenraum  $I_{KK}$  der Kathodenkammer  $K_K$  typischerweise Wasserstoff, der über den Ablauf  $A_{KK}$  aus der Zelle zusammen mit der Lösung  $L_1$  abgeführt werden kann. Die Mischung aus Wasserstoff und Lösung  $L_1$  kann dann in einer besonderen Ausführungsform der vorliegenden Erfindung nach dem Fachmann bekannten Verfahren aufgetrennt werden. Im Innenraum  $I_{KA}$  der Anodenkammer  $K_A$ , wenn es sich bei der eingesetzten Alkalimetallverbindung um ein Halogenid, insbesondere Chlorid handelt, kann Chlor oder ein anderes Halogengas entstehen, welches über den Ablauf  $A_{KK}$  aus der Zelle zusammen mit der Lösung  $L_4$  abgeführt werden kann. Daneben kann auch Sauerstoff oder/und Kohlendioxid entstehen, was ebenso abgeführt werden kann. Die Mischung aus Chlor, Sauerstoff und/oder  $\text{CO}_2$  und Lösung  $L_4$  kann dann in einer besonderen Ausführungsform der vorliegenden Erfindung nach dem Fachmann bekannten Verfahren aufgetrennt werden. Genauso kann dann nach Abtrennung der Gase Chlor, Sauerstoff und/oder  $\text{CO}_2$  von der Lösung  $L_4$  diese nach dem Fachmann bekannten Verfahren voneinander abgetrennt werden.

#### 4.2.4 Zusätzliche Vorteile der Schritte ( $\beta 1$ ) bis ( $\beta 3$ )

Diese Durchführung der Schritte ( $\beta 1$ ) bis ( $\beta 3$ ) bringen noch weitere überraschende Vorteile, die im Lichte des Standes der Technik nicht zu erwarten waren. Durch die Schritte ( $\beta 1$ ) bis ( $\beta 3$ ) des erfindungsgemäßen Verfahrens wird der säurelabile Feststoffelektrolyt vor Korrosion geschützt, ohne dass dabei wie im Stand der Technik Alkoholatlösung aus dem Kathodenraum als Pufferlösung geopfert werden muss. Damit sind diese Verfahrensschritte effizienter als die in WO 2008/076327 A1 beschriebene Vorgehensweise, in der die Produktlösung für die Mittelkammer verwendet wird, was den Gesamtumsatz schmälert.

#### 4.3 Kennzeichnendes Merkmal des erfindungsgemäßen Verfahrens

Das erfindungsgemäße Verfahren ist dadurch gekennzeichnet, dass mindestens eine, bevorzugt beide, der folgenden Bedingungen (i), (ii) erfüllt ist/ sind. In einer bevorzugten Ausführungsform ist in den Fällen, in denen die Verbindung  $V_{AM}$  außerhalb der Elektrolysezelle  $E$  ausgebildet ist, auch die im folgenden beschriebene Bedingung (iii) erfüllt.

##### 4.3.1 Bedingung (i)

(i)  $O_{EA}$  ist als Ebene ausgebildet, deren Normale  $N_{OEA}$  einen Winkel  $\varphi_{EA}$ , wobei  $0^{\circ} < \varphi_{EA} < 45^{\circ}$ , zum Schwerkraftsvektor  $V_s$  ausbildet, und der Ablauf  $A_{KA}$  ist auf der oberen Hälfte von  $O_{EA}$  angeordnet.

Dabei gilt bevorzugt  $0.5^\circ \leq \varphi_{EA} \leq 30^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EA} \leq 26^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EA} \leq 12^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EA} \leq 11^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EA} \leq 10^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EA} \leq 9^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EA} \leq 8^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EA} \leq 7^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EA} \leq 6^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EA} \leq 5^\circ$ ,  
 5 bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EA} \leq 4^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EA} \leq 3^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EA} \leq 2^\circ$ .

„Normale  $N_{OEA}$ “ im Sinne der Erfindung bezeichnet die Normalengerade (also orthogonale Gerade) oder auch den Normalenvektor (also orthogonalen Vektor) zu der im Wesentlichen als Ebene ausgebildeten Oberseite  $O_{EA}$ .

10

Die Normale  $N_{OEA}$  ist demnach der Vektor oder die Gerade, der bzw. die senkrecht auf der Ebene, die von der Oberseite  $O_{EA}$  ausgebildet wird, steht. Dieser Vektor schneidet den Vektor der Schwerkraft im Winkel  $\varphi_{EA}$ .

15 Demnach kann der Winkel  $\varphi_{EA}$  ermittelt werden, in dem die Gerade, die senkrecht auf der durch die Oberseite  $O_{EA}$  ausgebildeten Ebene steht, mit einer zur Richtung der Schwerkraft parallelen Gerade geschnitten wird.

Wenn diese beiden Geraden bzw. diese beiden Vektoren sich in einem Winkel schneiden, der  
 20 größer  $0^\circ$  und kleiner  $45^\circ$  ist, dann ist die Bedingung, dass „die Normale  $N_{OEA}$  einen Winkel  $\varphi_{EA}$  zum Schwerkraftsvektor  $V_s$  ausbildet, wobei  $0^\circ < \varphi_{EA} < 45^\circ$ “, erfüllt.

Der Ablauf  $A_{KA}$  ist auf der oberen Hälfte von  $O_{EA}$  angeordnet. Dies bedeutet Folgendes: Durch die Neigung der Oberseite  $O_{EA}$  gegenüber dem Schwerkraftsvektor  $V_s$  und durch die Tatsache, dass  
 25  $O_{EA}$  als Ebene ausgebildet ist, liegt eine Hälfte der Oberseite  $O_{EA}$  höher als die andere Hälfte der Oberseite  $O_{EA}$ .  $A_{KA}$  ist auf dieser oberen Hälfte angebracht. In den bevorzugten Ausführungsformen, in denen  $A_{KA}$  auf dem oberen  $n_{KA}$ -tel von  $O_{EA}$  angeordnet ist, wobei  $n_{KA} = 3, 4, 5$  oder  $10$  ist, bedeutet dies, dass  $A_{KA}$  jeweils auf dem obersten  $n_{KA}$ -ten Teil von  $O_{EA}$  angeordnet ist.

30

Die Oberseite  $O_{EA}$  ist dadurch, dass ihre Normale  $N_{OEA}$  einen Winkel  $0^\circ < \varphi_{EA} < 45^\circ$  zum Schwerkraftsvektor  $V_s$  ausbildet, gegenüber diesem geneigt, wodurch im Innenraum  $I_{KA}$  entstehende Gase aufgrund des Dichteunterschiedes zum Elektrolyten an die höchste Stelle des Innenraums  $I_{KA}$  steigen. Dieses Aufsteigen der Gase wird dadurch erleichtert, dass die Oberseite  
 35  $O_{EA}$  als Ebene ausgebildet ist, insbesondere nicht etwa Stufen oder Zacken aufweist, in denen sich Gasblasen verfangen könnten. Dadurch, dass der Ablauf  $A_{KA}$  auf der oberen Hälfte von  $O_{EA}$  angeordnet ist, passiert mindestens ein Teil der Gase beim Aufsteigen zur höchsten Stelle den Ablauf  $A_{KA}$  und wird so aus dem Innenraum  $I_{KA}$  abgeführt, wodurch der Innenraum  $I_{KA}$  vollständig durch den Elektrolyten  $L_3$  gefüllt werden kann. Dies erhöht die Effizienz der Elektrolyse.

40

Es ist gemäß Bedingung (i)  $O_{EA}$  als Ebene ausgebildet, deren Normale  $N_{OEA}$  einen Winkel  $\varphi_{EA}$ , wobei  $0^\circ < \varphi_{EA} < 45^\circ$ , zum Schwerkraftsvektor  $V_s$  ausbildet, und der Ablauf  $A_{KA}$  ist auf der oberen Hälfte von  $O_{EA}$  angeordnet.

5 4.3.2 Bedingung (ii)

(ii)  $O_{EK}$  ist als Ebene ausgebildet, deren Normale  $N_{OEK}$  einen Winkel  $\varphi_{EK}$ , wobei  $0^\circ < \varphi_{EK} < 45^\circ$ , zum Schwerkraftsvektor  $V_s$  ausbildet, und der Ablauf  $A_{KK}$  ist auf der oberen Hälfte von  $O_{EK}$  angeordnet.

10

Dabei gilt bevorzugt  $0.5^\circ \leq \varphi_{EK} \leq 30^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} \leq 26^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} \leq 12^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} \leq 11^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} \leq 10^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} \leq 9^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} \leq 8^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} \leq 7^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} \leq 6^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} \leq 5^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} \leq 4^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} \leq 3^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} \leq 2^\circ$ .

15

„Normale  $N_{OEK}$ “ im Sinne der Erfindung bezeichnet die Normalengerade (also orthogonale Gerade) oder auch den Normalenvektor (also orthogonalen Vektor) zu der als Ebene ausgebildeten Oberseite  $O_{EK}$ .

20

Die Normale  $N_{OEK}$  ist demnach der Vektor oder die Gerade, der bzw. die senkrecht auf der Ebene, die von der Oberseite  $O_{EK}$  ausgebildet wird, steht. Dieser Vektor schneidet den Vektor der Schwerkraft im Winkel  $\varphi_{EK}$ .

25

Demnach kann der Winkel  $\varphi_{EK}$  ermittelt werden, in dem die Gerade, die senkrecht auf der durch die Oberseite  $O_{EK}$  ausgebildeten Ebene steht, mit einer zur Richtung der Schwerkraft parallelen Gerade geschnitten wird.

30

Wenn diese beiden Geraden bzw. diese beiden Vektoren sich in einem Winkel schneiden, der größer  $0^\circ$  und kleiner  $45^\circ$  ist, dann ist die Bedingung, dass „die Normale  $N_{OEK}$  einen Winkel  $\varphi_{EK}$  zum Schwerkraftsvektor  $V_s$  ausbildet, wobei  $0^\circ < \varphi_{EK} < 45^\circ$ “, erfüllt.

35

Der Ablauf  $A_{KK}$  ist auf der oberen Hälfte von  $O_{EK}$  angeordnet. Dies bedeutet Folgendes: Durch die Neigung der Oberseite  $O_{EK}$  gegenüber dem Schwerkraftsvektor  $V_s$  und durch die Tatsache, dass  $O_{EK}$  als Ebene ausgebildet ist, liegt eine Hälfte der Oberseite  $O_{EK}$  höher als die andere Hälfte der Oberseite  $O_{EK}$ .  $A_{KK}$  ist auf dieser oberen Hälfte angebracht. In den bevorzugten Ausführungsformen, in denen  $A_{KK}$  auf dem oberen  $n_{KK}$ -tel von  $O_{EK}$  angeordnet ist, wobei  $n_{KK} = 3, 4, 5$  oder 10 ist, bedeutet dies, dass es auf dem obersten  $n_{KK}$ -ten Teil von  $O_{EK}$  angeordnet ist.

Die Oberseite  $O_{EK}$  ist dadurch, dass ihre Normale  $N_{O_{EK}}$  einen Winkel  $0^\circ < \varphi_{EK} < 45^\circ$  zum Schwerkraftsvektor  $V_s$  ausbildet, gegenüber diesem geneigt, wodurch im Innenraum  $I_{KK}$  entstehende Gase aufgrund des Dichteunterschiedes zum Elektrolyten an die höchste Stelle des Innenraums  $I_{KK}$  steigen. Dieses Aufsteigen der Gase wird dadurch erleichtert, dass die Oberseite  $O_{EK}$  als Ebene ausgebildet ist, insbesondere nicht etwa Stufen oder Zacken aufweist, in denen sich Gasblasen verfangen könnten. Dadurch, dass der Ablauf  $A_{KK}$  auf der oberen Hälfte von  $O_{EK}$  angeordnet ist, passiert mindestens ein Teil der Gase beim Aufsteigen zur höchsten Stelle den Ablauf  $A_{KK}$  und wird so aus dem Innenraum  $I_{KK}$  abgeführt, wodurch der Innenraum  $I_{KK}$  vollständig durch den Elektrolyten  $L_2$  gefüllt werden kann. Dies erhöht die Effizienz der Elektrolyse.

10

Es ist gemäß Bedingung (ii)  $O_{EK}$  als Ebene ausgebildet, deren Normale  $N_{O_{EK}}$  einen Winkel  $\varphi_{EK}$ , wobei  $0^\circ < \varphi_{EK} < 45^\circ$ , zum Schwerkraftsvektor  $V_s$  ausbildet, und der Ablauf  $A_{KK}$  ist auf der oberen Hälfte von  $O_{EK}$  angeordnet.

#### 15 4.3.3 Bedingung (i) und (ii) erfüllt

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens sind beide Bedingungen (i) und (ii) erfüllt. Dann sind noch bevorzugter  $\varphi_{EK}$  und  $\varphi_{EA}$  gleich. Noch mehr bevorzugter gilt für beide dann:

20  $0.5^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} \leq 30^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} \leq 26^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} \leq 12^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} \leq 11^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} \leq 10^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} \leq 9^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} \leq 8^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} \leq 7^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} \leq 6^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} \leq 5^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} \leq 4^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} \leq 3^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} \leq 2^\circ$ .

25

Noch bevorzugter ist dann Ablauf  $A_{KA}$  auf der oberen Hälfte von  $O_{EA}$  angeordnet und Ablauf  $A_{KK}$  auf der oberen Hälfte von  $O_{EK}$  angeordnet, noch bevorzugter ist dann Ablauf  $A_{KA}$  auf dem oberen Drittel von  $O_{EA}$  angeordnet und Ablauf  $A_{KK}$  auf dem oberen Drittel von  $O_{EK}$  angeordnet, noch bevorzugter ist dann Ablauf  $A_{KA}$  auf dem oberen Viertel von  $O_{EA}$  angeordnet und Ablauf  $A_{KK}$  auf dem oberen Viertel von  $O_{EK}$  angeordnet, noch bevorzugter ist dann Ablauf  $A_{KA}$  auf dem oberen Fünftel von  $O_{EA}$  angeordnet und Ablauf  $A_{KK}$  auf dem oberen Fünftel von  $O_{EK}$  angeordnet, noch bevorzugter ist dann Ablauf  $A_{KA}$  auf dem oberen Zehntel von  $O_{EA}$  angeordnet und Ablauf  $A_{KK}$  auf dem oberen Zehntel von  $O_{EK}$  angeordnet.

35 Durch die Kombination der beiden Bedingungen (i) und (ii) wird besonders effizient die Ausbildung eines Gaspolsters im jeweiligen Innenraum  $I_{KK}$  und  $I_{KA}$  der Kathodenkammer  $K_K$  bzw. Anodenkammer  $K_A$  verhindert.

#### 4.3.4 Optionale Bedingung (iii)

In einer bevorzugten Ausführungsform der Fälle, in denen die Elektrolysezelle **E** eine Mittelkammer **K<sub>M</sub>** aufweist und die Verbindung **V<sub>AM</sub>** außerhalb der Elektrolysezelle **E** ausgebildet ist, gilt:

- 5 (iii) **O<sub>EM</sub>** ist als Ebene ausgebildet, deren Normale **N<sub>OEM</sub>** einen Winkel  $\varphi_{EM}$ , wobei  $0^\circ < \varphi_{EM} < 45^\circ$ , zum Schwerkraftsvektor **V<sub>s</sub>** ausbildet, und der Ablauf **A<sub>KM</sub>** ist auf der oberen Hälfte von **O<sub>EM</sub>** angeordnet.

- 10 Dabei gilt bevorzugt  $0.5^\circ \leq \varphi_{EM} \leq 30^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EM} \leq 26^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EM} \leq 12^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EM} \leq 11^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EM} \leq 10^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EM} \leq 9^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EM} \leq 8^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EM} \leq 7^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EM} \leq 6^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EM} \leq 5^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EM} \leq 4^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EM} \leq 3^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EM} \leq 2^\circ$ .

- 15 „Normale **N<sub>OEM</sub>**“ im Sinne der Erfindung bezeichnet die Normalengerade (also orthogonale Gerade) oder auch den Normalenvektor (also orthogonalen Vektor) zu der als Ebene ausgebildeten Oberseite **O<sub>EM</sub>**.

- 20 Die Normale **N<sub>OEM</sub>** ist der Vektor oder die Gerade, der bzw. die senkrecht auf der Ebene, die von der Oberseite **O<sub>EM</sub>** ausgebildet wird, steht. Dieser Vektor schneidet den Vektor der Schwerkraft im Winkel  $\varphi_{EM}$ .

- 25 Genauso kann der Winkel  $\varphi_{EM}$  ermittelt werden, in dem die Gerade, die senkrecht auf der durch die Oberseite **O<sub>EM</sub>** ausgebildeten Ebene steht, mit einer zur Richtung der Schwerkraft parallelen Gerade geschnitten wird.

- Wenn diese beiden Geraden bzw. diese beiden Vektoren sich in einem Winkel schneiden, der größer  $0^\circ$  und kleiner  $45^\circ$  ist, dann ist die Bedingung, dass „die Normale **N<sub>OEM</sub>** einen Winkel  $\varphi_{EM}$  zum Schwerkraftsvektor **V<sub>s</sub>** ausbildet, wobei  $0^\circ < \varphi_{EM} < 45^\circ$ “, erfüllt.

- 30 Der Ablauf **A<sub>KM</sub>** ist in dieser bevorzugten Ausführungsform auf der oberen Hälfte von **O<sub>EM</sub>** angeordnet. Dies bedeutet Folgendes: Durch die Neigung der Oberseite **O<sub>EM</sub>** gegenüber dem Schwerkraftsvektor **V<sub>s</sub>** und durch die Tatsache, dass **O<sub>EM</sub>** als Ebene ausgebildet ist, liegt eine Hälfte der Oberseite **O<sub>EM</sub>** höher als die andere Hälfte der Oberseite **O<sub>EM</sub>**. **A<sub>KM</sub>** ist auf dieser oberen Hälfte angebracht. In den bevorzugten Ausführungsformen, in denen **A<sub>KM</sub>** auf dem oberen  $n_{KM}$ -tel von **O<sub>EM</sub>** angeordnet ist, wobei  $n_{KM} = 3, 4, 5$  oder  $10$  ist, bedeutet dies, dass es auf dem obersten  $n_{KM}$ -ten Teil von **O<sub>EM</sub>** angeordnet ist.

- 40 Die Oberseite **O<sub>EM</sub>** ist in dieser bevorzugten Ausführungsform dadurch, dass ihre Normale **N<sub>OEM</sub>** einen Winkel  $0^\circ < \varphi_{EK} < 45^\circ$  zum Schwerkraftsvektor **V<sub>s</sub>** ausbildet, gegenüber diesem geneigt, wodurch im Innenraum **I<sub>KM</sub>** entstehende Gase aufgrund des Dichteunterschiedes an die höchste

Stelle des Innenraums  $I_{KM}$  steigen. Dieses Aufsteigen der Gase wird dadurch erleichtert, dass die Oberseite  $O_{EM}$  als Ebene ausgebildet ist, insbesondere nicht etwa Stufen oder Zacken aufweist, in denen sich Gasblasen verfangen könnten. Dadurch, dass der Ablauf  $A_{KM}$  auf der oberen Hälfte von  $O_{EM}$  angeordnet ist, passiert mindestens ein Teil der Gase beim Aufsteigen zur höchsten Stelle den Ablauf  $A_{KM}$  und werden so aus dem Innenraum  $I_{KM}$  abgeführt, wodurch der Innenraum  $I_{KM}$  vollständig durch den Elektrolyten  $L_2$  gefüllt werden kann. Dies erhöht die Effizienz der Elektrolyse.

- In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform sind alle Bedingungen (i), (ii) und (iii) erfüllt. Dann gilt noch bevorzugter  $\varphi_{EK} = \varphi_{EA} = \varphi_{EM}$ . Noch mehr bevorzugter gilt für alle drei dann:
- 10  $0.5^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} = \varphi_{EM} \leq 30^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} = \varphi_{EM} \leq 26^\circ$ ,  
bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} = \varphi_{EM} \leq 12^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} = \varphi_{EM} \leq 11^\circ$ ,  
bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} = \varphi_{EM} \leq 10^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} = \varphi_{EM} \leq 9^\circ$ ,  
bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} = \varphi_{EM} \leq 8^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} = \varphi_{EM} \leq 7^\circ$ ,  
bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} = \varphi_{EM} \leq 6^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} = \varphi_{EM} \leq 5^\circ$ ,  
15 bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} = \varphi_{EM} \leq 4^\circ$ , bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} = \varphi_{EM} \leq 3^\circ$ ,  
bevorzugter  $1^\circ \leq \varphi_{EK} = \varphi_{EA} = \varphi_{EM} \leq 2^\circ$ .

Es ist gemäß der optionalen Bedingung (iii)  $O_{EM}$  als Ebene ausgebildet, deren Normale  $N_{OEM}$  einen Winkel  $\varphi_{EM}$ , wobei  $0^\circ < \varphi_{EM} < 45^\circ$ , zum Schwerkraftsvektor  $V_s$  ausbildet, und der Ablauf  $A_{KM}$  ist auf der oberen Hälfte von  $O_{EM}$  angeordnet.

## 5. Beispiele

### 5.1 Vergleichsbeispiel 1

- 5 Natriummethylat (NM) wurde über einen kathodischen Prozess hergestellt, wobei in der Anodenkammer 20 Gew.-%-ige NaCl-Lösung (in Wasser) und in der Kathodenkammer 10 Gew.-%-ige methanolische NM-Lösung zugeführt werden. Dabei bestand die Elektrolysezelle aus drei Kammern, wie in Abbildung 7 gezeigt. Die Elektrolysezelle wurde nicht geneigt, so dass die Normale der Oberseite der Elektrolysekammer parallel zum Schwerkraftsvektor verlief. Die
- 10 Abläufe der Anodenkammer und der Kathodenkammer fanden sich außerdem in der Mitte der Oberseite.

Die Verbindung zwischen Mittel- und Anodenkammer wurde durch einen Schlauch, der am Boden der Elektrolysezelle angebracht war, hergestellt. Die Anodenkammer und mittlere Kammer waren

15 durch eine 2.83 cm<sup>2</sup> Anionenaustauschermembran (Tokuyama AMX, Ammoniumgruppen auf Polymer) getrennt. Kathoden und Mittelkammer waren durch eine Keramik vom Typ NaSICON mit einer Fläche von 2.83 cm<sup>2</sup> getrennt. Die Keramik hatte eine chemische Zusammensetzung der Formel Na<sub>3,4</sub>Zr<sub>2,0</sub>Si<sub>2,4</sub>P<sub>0,6</sub>O<sub>12</sub>.

Der Anolyt wurde durch die mittlere Kammer in die Anodenkammer überführt. Die Durchflussrate

20 des Anolyten betrug 1 l/h, jene des Katholyten betrug 90 ml/h, und es wurde ein Strom von 0.14 A angelegt. Die Temperatur betrug 35 °C. Die Elektrolyse wurde für 500 Stunden durchgeführt, wobei die Spannung konstant bei 5 V verblieb.

Es wurde beobachtet, dass sich in der Mittelkammer über längere Zeit ein pH-Gradient ausbildete, was auf die Wanderung der Ionen zu den Elektroden im Zuge der Elektrolyse und die Ausbreitung

25 der an der Anode in Folgereaktionen gebildeten Protonen zurückzuführen ist. Diese lokale Erhöhung des pH-Wertes ist unerwünscht, da er den Festelektrolyten angreifen kann und gerade bei sehr langen Laufzeiten zur Korrosion und Bruch des Festelektrolyten führen kann.

Daneben kommt es bei längeren Betriebszeiten zur Ausbildung von Gaspolstern in den

30 Innenräumen der Kathoden- und Anodenkammer, insbesondere durch die Entstehung von Chlorgas und Wasserstoff an der Anode bzw. Kathode.

Dies ist problematisch, da das durch diese Gase in Anspruch genommene Volumen nicht mehr für die Elektrolyse zur Verfügung steht und den Widerstand erhöht. Daneben sollte Chlor möglichst

35 schnell entfernt werden, um die Ansäuerung des Elektrolyten zu einzudämmen. Wird dieser sauer, schädigt das die NaSICON-Keramik.

### 5.2 Vergleichsbeispiel 2

Das Vergleichsbeispiel 1 wurde mit einer Zweikammerzelle umfassend nur eine Anoden- und eine Kathodenkammer, wobei die Anodenkammer durch die Keramik vom Typ NaSICON von der Kathodenkammer getrennt war, wiederholt. Die Anordnung entsprach der in Abbildung 6 gezeigten. Somit enthielt diese Elektrolysezelle keine Mittelkammer. Die Elektrolysezelle wurde nicht geneigt, so dass die Normale der Oberseite der Elektrolysekammer parallel zum Schwerkraftsvektor verlief. Die Abläufe der Anodenkammer und der Kathodenkammer fanden sich außerdem in der Mitte der Oberseite.

Dies schlägt sich in einer noch schnelleren Korrosion der Keramik im Vergleich zum Vergleichsbeispiel 1 nieder, was zu einem schnellen Anstieg der Spannungskurve führt. Bei einem Startwert der Spannung von  $< 5$  V steigt diese innerhalb von 100 Stunden auf  $> 20$  V.

15

### 5.3 Erfindungsgemäßes Beispiel 1

Vergleichsbeispiel 1 wird wiederholt, wobei eine Elektrolysezelle gemäß Abbildungen 2 A und 2 B eingesetzt wird, die geneigt wird. Die Abläufe der Anodenkammer und der Kathodenkammer fanden sich außerdem auf der Oberseite in der Nähe der höchsten Kante.

20

Durch diese Anordnung werden die in der Anoden- und Kathodenkammer entstehenden Gase schnell am Ablauf aus der Elektrolysekammer abgeleitet. Dies sorgt dafür, dass die Volumina der Innenräume nicht durch Gasblasen blockiert werden. Daneben wird der Ansäuerungsprozess der Elektrolyten, insbesondere des Anolyten, eingedämmt.

25

### 5.4 Vergleichsbeispiel 3

Vergleichsbeispiel 2 wird wiederholt, wobei eine Elektrolysezelle gemäß Abbildungen 1 A und 1 B eingesetzt wird, die geneigt wird. Die Abläufe der Anodenkammer und der Kathodenkammer fanden sich außerdem auf der Oberseite in der Nähe der höchsten Kante.

30

Durch diese Anordnung werden die in der Anoden- und Kathodenkammer entstehenden Gase schnell am Ablauf aus der Elektrolysekammer abgeleitet. Dies sorgt dafür, dass die Volumina der Innenräume nicht durch Gasblasen blockiert werden. Daneben wird der Ansäuerungsprozess der Elektrolyten, insbesondere des Anolyten, eingedämmt.

35

### 5.5 Ergebnis

Durch die erfindungsgemäße Neigung der Oberseite der Elektrolysezelle im Bereich der Anoden- und Kathodenkammer sowie die erfindungsgemäße Anordnung der Abläufe wird die Ausbildung eines Gaspolsters in dem jeweiligen Innenraum verhindert. Dadurch stehen die Volumina der Innenräume vollständig für die Elektrolyten und somit für die Elektrolyse zur Verfügung und es kommt nicht zu unerwünschten Spannungsanstiegen. An der jeweiligen Elektrode entstehende Gase (wie Chlor) werden schnell abgeführt, was die Ansäuerung des Elektrolyten unterbindet und so die NaSICON-Keramik zusätzlich schont.

10

Durch die Verwendung der Dreikammerzelle im erfindungsgemäßen Verfahren wird außerdem die Korrosion des Festelektrolyten verhindert, wobei gleichzeitig kein Alkalimetallalkoholatprodukt für die Mittelkammer geopfert werden muss und die Spannung konstant gehalten wird. Diese Vorteile, die schon aus dem Vergleich der beiden Vergleichsbeispiele 1 und 2 ersichtlich sind, unterstreichen den überraschenden Effekt des Einsatzes der Elektrolysezelle umfassend mindestens eine Mittelkammer in dem erfindungsgemäßen Verfahren.

15

## 6. Referenzzeichen in den Abbildungen

Elektrolysezelle	<b>E</b>	<1>
Anodenkammer	<b>K<sub>A</sub></b>	<11>
Zulauf	<b>Z<sub>KA</sub></b>	<110>
Ablauf	<b>A<sub>KA</sub></b>	<111>
Innenraum	<b>I<sub>KA</sub></b>	<112>
anodische Elektrode	<b>E<sub>A</sub></b>	<113>
Kathodenkammer	<b>K<sub>K</sub></b>	<12>
Zulauf	<b>Z<sub>KK</sub></b>	<120>
Ablauf	<b>A<sub>KK</sub></b>	<121>
Innenraum	<b>I<sub>KK</sub></b>	<122>
kathodische Elektrode	<b>E<sub>K</sub></b>	<123>
Mittelkammer	<b>K<sub>M</sub></b>	<13>
Zulauf	<b>Z<sub>KM</sub></b>	<130>
Ablauf	<b>A<sub>KM</sub></b>	<131>
Innenraum	<b>I<sub>KM</sub></b>	<132>
Diffusionsbarriere	<b>D</b>	<14>
Verbindung	<b>V<sub>AM</sub></b>	<15>
Trennwand	<b>W</b>	<16>
Festelektrolytkeramik	<b>F<sub>A</sub></b>	<18>
Behältnis	<b>B<sub>E</sub></b>	<800>
Teil des Behältnisses <b>B<sub>E</sub></b> , der den Anodenkammerinnenraum <b>I<sub>KA</sub></b> begrenzt	<b>B<sub>EA</sub></b>	<8001>
Teil des Behältnisses <b>B<sub>E</sub></b> , der den Kathodenkammerinnenraum <b>I<sub>KK</sub></b> begrenzt	<b>B<sub>EK</sub></b>	<8002>
Teil des Behältnisses <b>B<sub>E</sub></b> , der den Mittelkammerinnenraum <b>I<sub>KM</sub></b> begrenzt	<b>B<sub>EM</sub></b>	<8003>
Oberseite	<b>O<sub>E</sub></b>	<801>
Teil der Oberseite <b>O<sub>E</sub></b> , der den Anodenkammerinnenraum <b>I<sub>KA</sub></b> begrenzt	<b>O<sub>EA</sub></b>	<8011>
Teil der Oberseite <b>O<sub>E</sub></b> , der den Kathodenkammerinnenraum <b>I<sub>KK</sub></b> begrenzt	<b>O<sub>EK</sub></b>	<8012>
Teil der Oberseite <b>O<sub>E</sub></b> , der den Mittelkammerinnenraum <b>I<sub>KM</sub></b> begrenzt	<b>O<sub>EM</sub></b>	<8013>
Alkalimetallalkoholats XOR im Alkohol ROH	<b>L<sub>1</sub></b>	<21>
Lösung umfassend den Alkohol ROH	<b>L<sub>2</sub></b>	<22>
neutrale oder alkalische, wässrige Lösung eines	<b>L<sub>3</sub></b>	<23>

Salzes <b>S</b> umfassend X als Kation		
wässrige Lösung von <b>S</b> , wobei $[\mathbf{S}]_{L4} < [\mathbf{S}]_{L3}$ .	$L_4$	<24>
Perspektive in Fig. 1 B, 2 B und 3 B, die der Draufsicht in Fig. 1 A, 2 A bzw. 3 A entspricht		<30>
Schwerkraftsvektor	$V_s$	<90>
Normale zu $O_{EA}$	$N_{OEA}$	<91>
Normale zu $O_{EK}$	$N_{OEK}$	<92>
Winkel zwischen Normale $N_{OEA}$ und Schwerkraftsvektor $V_s$	$\varphi_{EA}$	
Winkel zwischen Normale $N_{OEK}$ und Schwerkraftsvektor $V_s$	$\varphi_{EK}$	

**Patentansprüche**

1. Verfahren zur Herstellung einer Lösung  $L_1$  <21> eines Alkalimetallalkoholats XOR im Alkohol ROH in einer Elektrolysezelle  $E$  <1>, wobei X ein Alkalimetallkation ist und R ein Alkylrest mit 1 bis  
5 4 Kohlenstoffatomen ist,

wobei die Elektrolysezelle  $E$  <1> ein Behältnis  $B_E$  <800> und eine Oberseite  $O_E$  <801> ausbildet,

wobei die Elektrolysezelle  $E$  <1> mindestens eine Anodenkammer  $K_A$  <11>, mindestens eine  
10 Kathodenkammer  $K_K$  <12> und mindestens eine dazwischen liegende Mittelkammer  $K_M$  <13> umfasst,

wobei die mindestens eine Anodenkammer  $K_A$  <11>

- mindestens einen Zulauf  $Z_{KA}$  <110>>,
- 15 - mindestens einen Ablauf  $A_{KA}$  <111>
- und einen Innenraum  $I_{KA}$  <112>, der eine anodische Elektrode  $E_A$  <113> umfasst und durch einen Teil  $O_{EA}$  <8011> der Oberseite  $O_E$  <801> und einen Teil  $B_{EA}$  <8001> des Behältnisses  $B_E$  <800> begrenzt wird,

umfasst,

20

wobei die mindestens eine Kathodenkammer  $K_K$  <12>

- mindestens einen Zulauf  $Z_{KK}$  <120>>,
- mindestens einen Ablauf  $A_{KK}$  <121>
- und einen Innenraum  $I_{KK}$  <122>, der eine kathodische Elektrode  $E_K$  <123> umfasst und  
25 durch einen Teil  $O_{EK}$  <8012> der Oberseite  $O_E$  <801> und einen Teil  $B_{EK}$  <8002> des Behältnisses  $B_E$  <800> begrenzt wird,

umfasst,

und wobei die Mittelkammer  $K_M$  <13>

- 30 - mindestens einen Zulauf  $Z_{KM}$  <130>>,
- mindestens einen Ablauf  $A_{KM}$  <131>
- und einen Innenraum  $I_{KM}$  <132>, der durch einen Teil  $O_{EM}$  <8013> der Oberseite  $O_E$  <801> und einen Teil  $B_{EM}$  <8003> des Behältnisses  $B_E$  <800> begrenzt wird,

umfasst,

35

und wobei  $I_{KA}$  <112> und  $I_{KM}$  <132> durch eine Diffusionsbarriere  $D$  <14> voneinander abgetrennt sind, und  $A_{KM}$  <131> durch eine Verbindung  $V_{AM}$  <15> mit dem Zulauf  $Z_{KA}$  <110> verbunden ist, so dass durch die Verbindung  $V_{AM}$  <15> Flüssigkeit aus  $I_{KM}$  <132> in  $I_{KA}$  <112> geleitet werden kann,

40 wobei

$I_{KK}$  <122> und  $I_{KM}$  <132> durch eine Trennwand  $W$  <16> umfassend mindestens eine alkalikationenleitende Festelektrolytkeramik  $F_A$  <18> voneinander abgetrennt sind, wobei die von der Trennwand  $W$  <16> umfassten alkalikationenleitenden Festelektrolytkeramiken den Innenraum  $I_{KK}$  <122> und den Innenraum  $I_{KM}$  <132> direkt kontaktieren,

5

wobei die folgenden, gleichzeitig ablaufenden Schritte ( $\beta_1$ ), ( $\beta_2$ ), ( $\beta_3$ ) durchgeführt werden:

( $\beta_1$ ) eine Lösung  $L_2$  <22> umfassend den Alkohol ROH wird durch  $I_{KK}$  <122> geleitet,

10

( $\beta_2$ ) eine neutrale oder alkalische, wässrige Lösung  $L_3$  <23> eines Salzes  $S$  umfassend  $X$  als Kation wird durch  $I_{KM}$  <132>, dann über  $V_{AM}$  <15>, dann durch  $I_{KA}$  <112> geleitet,

( $\beta_3$ ) zwischen  $E_A$  <113> und  $E_K$  <123> wird Spannung angelegt,

15

wodurch am Ablauf  $A_{KK}$  <121> die Lösung  $L_1$  <21> erhalten wird, wobei die Konzentration von XOR in  $L_1$  <21> höher ist als in  $L_2$  <22>>,

und wodurch am Ablauf  $A_{KA}$  <111> eine wässrige Lösung  $L_4$  <24> von  $S$  erhalten wird, wobei die Konzentration von  $S$  in  $L_4$  <24> geringer ist als in  $L_3$  <23>,

20

**dadurch gekennzeichnet, dass**

mindestens eine der folgenden Bedingungen (i), (ii) erfüllt ist:

25

(i)  $O_{EA}$  <8011> ist als Ebene ausgebildet, deren Normale  $N_{OEA}$  <91> einen Winkel  $\varphi_{EA}$  zum Schwerkraftsvektor  $V_s$  <90> ausbildet, und der Ablauf  $A_{KA}$  <111> ist auf der oberen Hälfte von  $O_{EA}$  <8011> angeordnet, wobei  $0^\circ < \varphi_{EA} < 45^\circ$ ;

30

(ii)  $O_{EK}$  <8012> ist als Ebene ausgebildet, deren Normale  $N_{OEK}$  <92> einen Winkel  $\varphi_{EK}$  zum Schwerkraftsvektor  $V_s$  <90> ausbildet, und der Ablauf  $A_{KK}$  <121> ist auf der oberen Hälfte von  $O_{EK}$  <8012> angeordnet, wobei  $0^\circ < \varphi_{EK} < 45^\circ$ .

2. Verfahren nach Anspruch 1, wobei beide Bedingungen (i) und (ii) erfüllt sind.

35

3. Verfahren nach Anspruch 2, wobei  $\varphi_{EK}$  und  $\varphi_{EA}$  gleich sind.

4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, wobei die von der Trennwand  $W$  <16> umfassten alkalikationenleitenden Festelektrolytkeramiken unabhängig voneinander eine Struktur der Formel  $M^{I}_{1+2w+x-y+z} M^{II}_w M^{III}_x Zr^{IV}_{2-w-x-y} M^V_y (SiO_4)_z (PO_4)_{3-z}$  aufweisen,

40

wobei  $M^I$  ausgewählt aus  $Na^+$ ,  $Li^+$  ist,  
 $M^{II}$  ein zweiwertiges Metallkation ist,  
 $M^{III}$  ein dreiwertiges Metallkation ist,  
 $M^V$  ein fünfwertiges Metallkation ist,

5 die römischen Indizes I, II, III, IV, V die Oxidationszahlen angeben, in der die jeweiligen Metallkationen vorliegen,

und  $w$ ,  $x$ ,  $y$ ,  $z$  reelle Zahlen sind, wobei gilt, dass  $0 \leq x < 2$ ,  $0 \leq y < 2$ ,  $0 \leq w < 2$ ,  $0 \leq z < 3$ ,  
 und wobei  $w$ ,  $x$ ,  $y$ ,  $z$  so gewählt werden, dass  $1 + 2w + x - y + z \geq 0$  und  $2 - w - x - y \geq 0$  gilt.

10

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, wobei  $X$  aus der Gruppe bestehend aus  $Li^+$ ,  $Na^+$ ,  $K^+$  ausgewählt ist.

6. Verfahren nach Anspruch 5, wobei  $X = Na^+$ .

15

7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, wobei  $S$  ein Halogenid, Sulfat, Sulfit, Nitrat, Hydrogencarbonat oder Carbonat von  $X$  ist.

8. Verfahren nach Anspruch 7, wobei  $S$  ein Chlorid von  $X$  ist.

20

9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, wobei  $R$  aus der Gruppe bestehend aus Methyl, Ethyl ausgewählt ist.

10. Verfahren nach Anspruch 9, wobei  $R = Methyl$  ist.

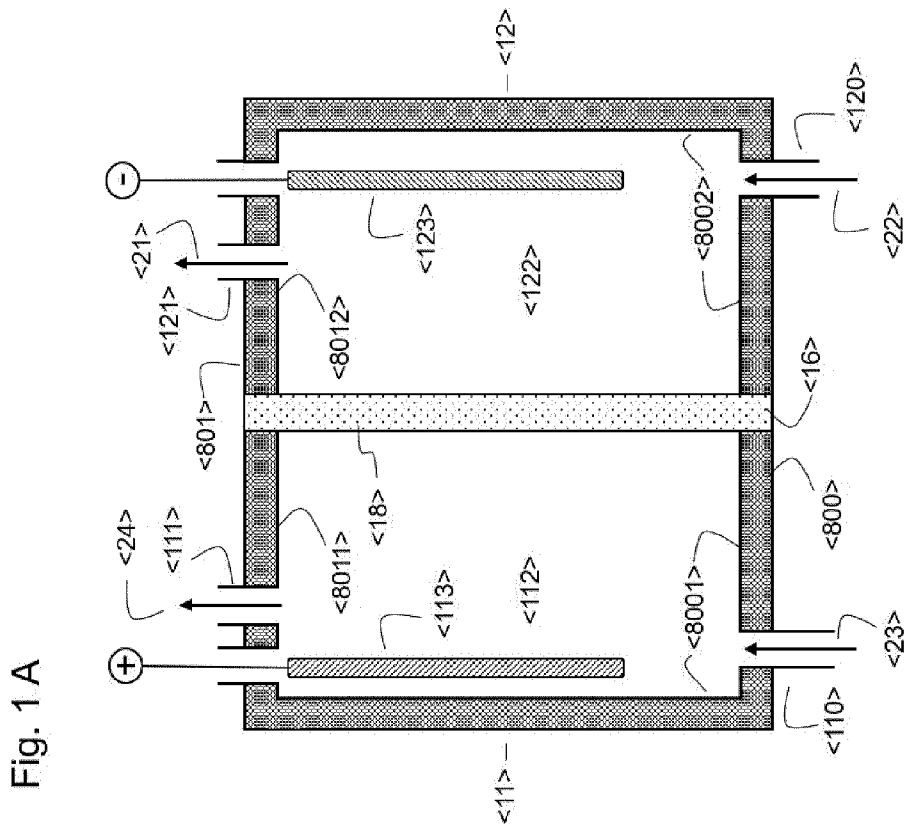
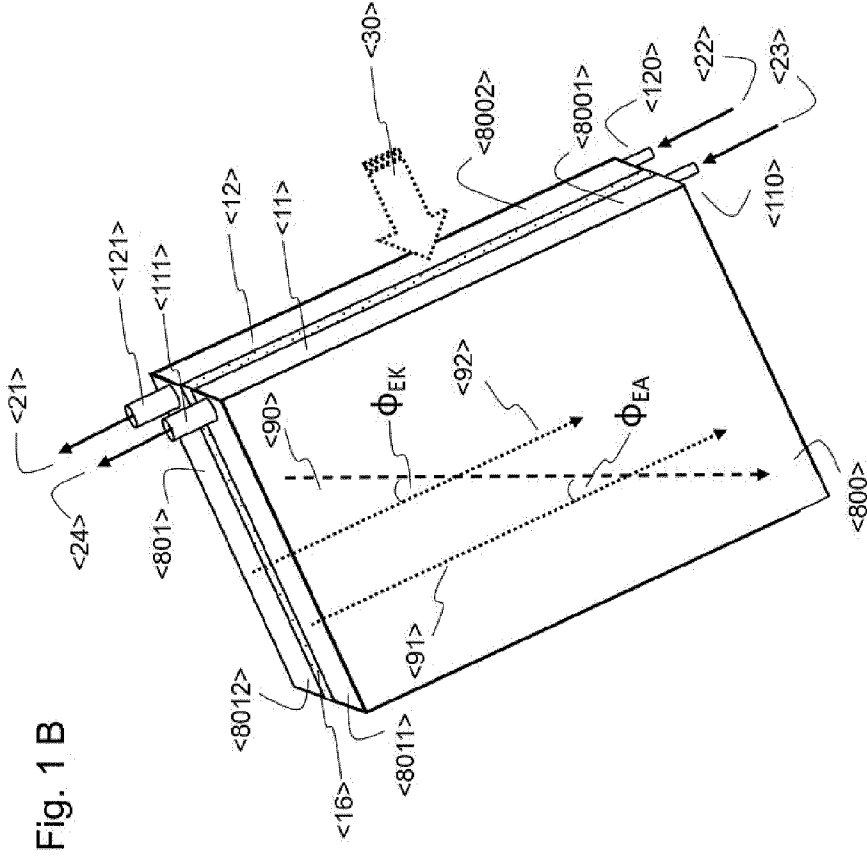
25

11. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 10, wobei die Verbindung  $V_{AM} <15>$  innerhalb der Elektrolysezelle  $E <1>$  ausgebildet ist.

12. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 10, wobei die Verbindung  $V_{AM} <15>$  außerhalb der  
 30 Elektrolysezelle  $E <1>$  ausgebildet ist.

13. Verfahren nach Anspruch 12, wobei die folgende Bedingung (iii) erfüllt ist:

(iii)  $O_{EM}$  ist als Ebene ausgebildet, deren Normale  $N_{OEM}$  einen Winkel  $\varphi_{EM}$ , wobei  $0^\circ < \varphi_{EM} < 45^\circ$ ,  
 zum Schwerkraftsvektor  $V_s$  ausbildet, und der Ablauf  $A_{KM}$  ist auf der oberen Hälfte von  $O_{EM}$   
 35 angeordnet.





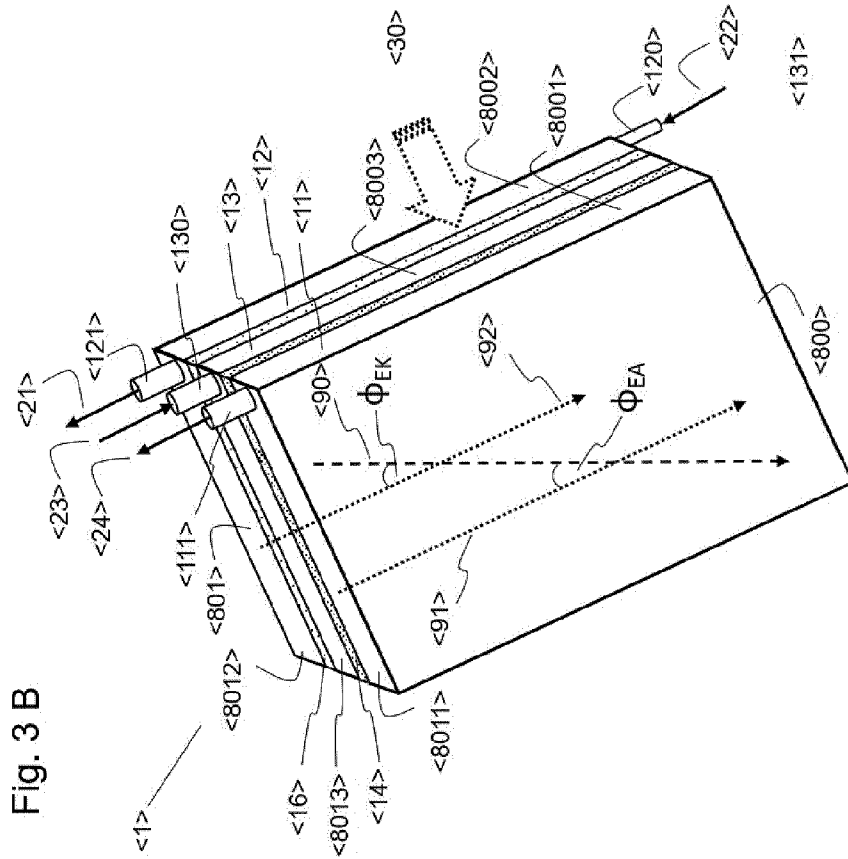


Fig. 3 B

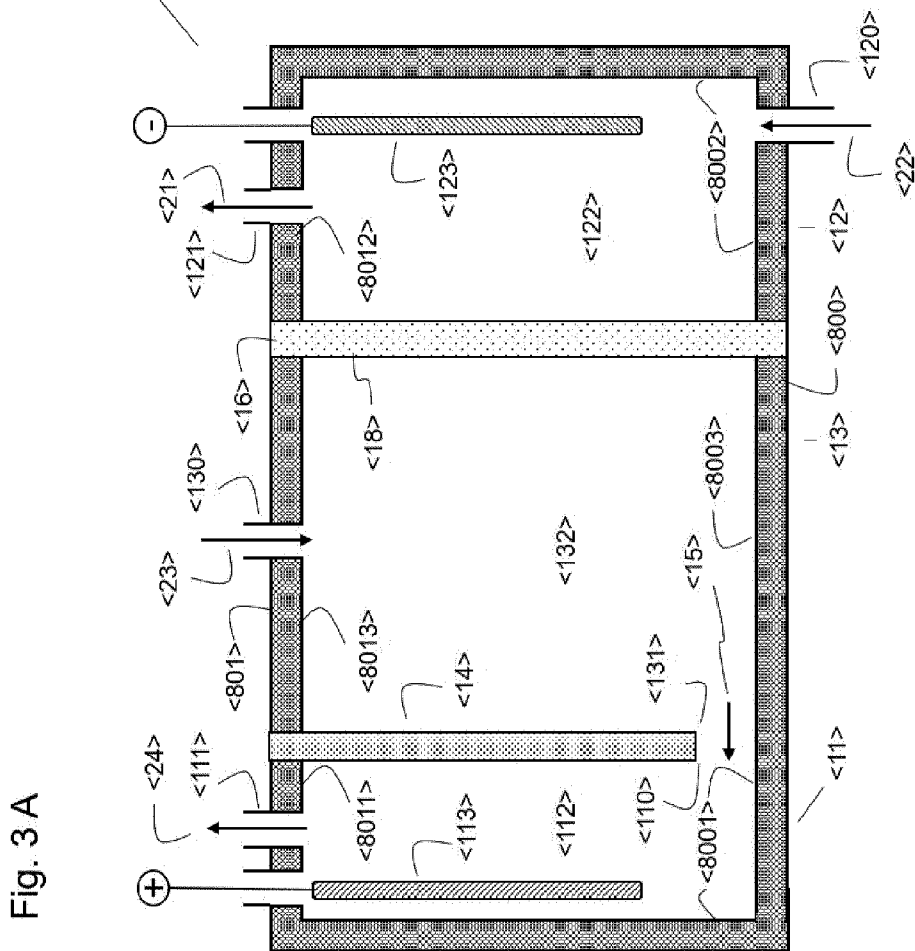


Fig. 3 A

Fig. 5

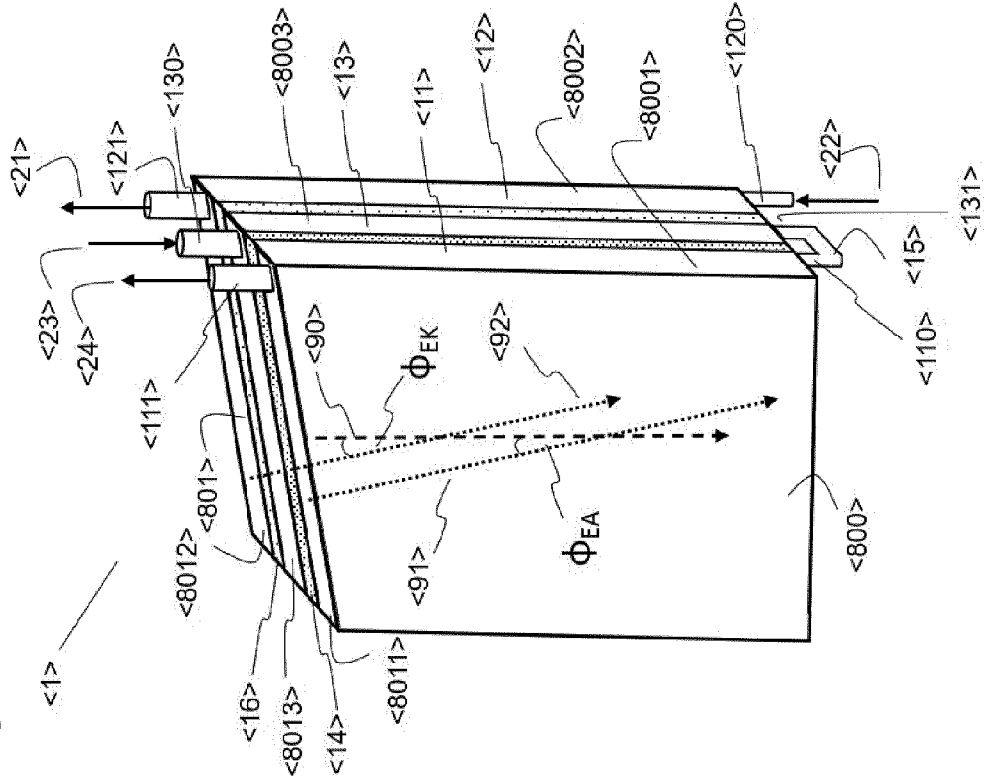
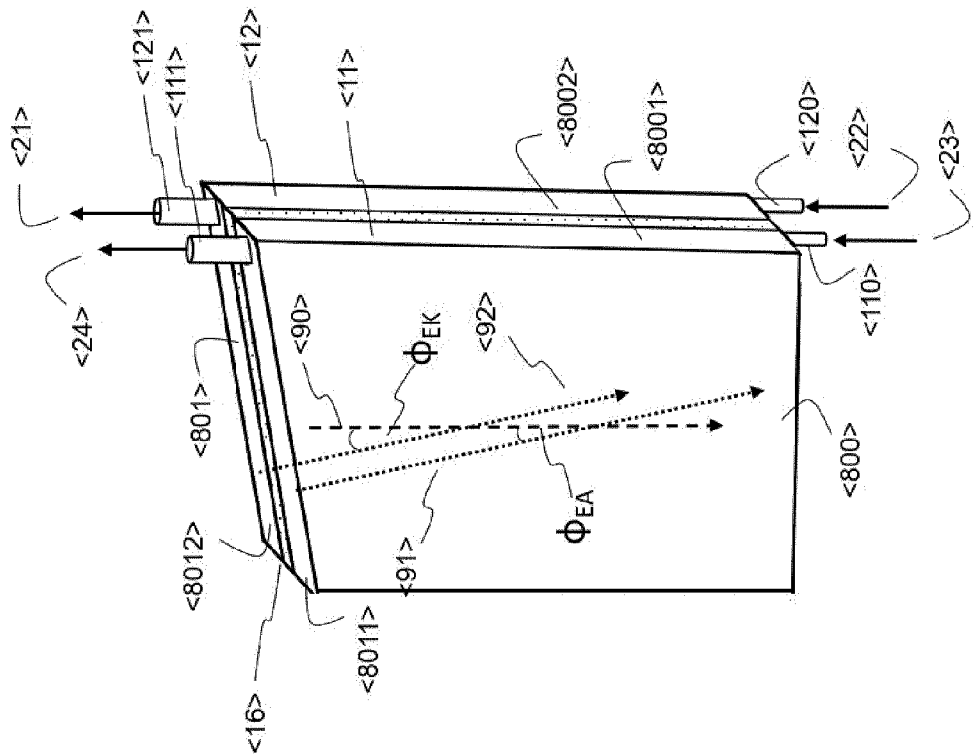


Fig. 4





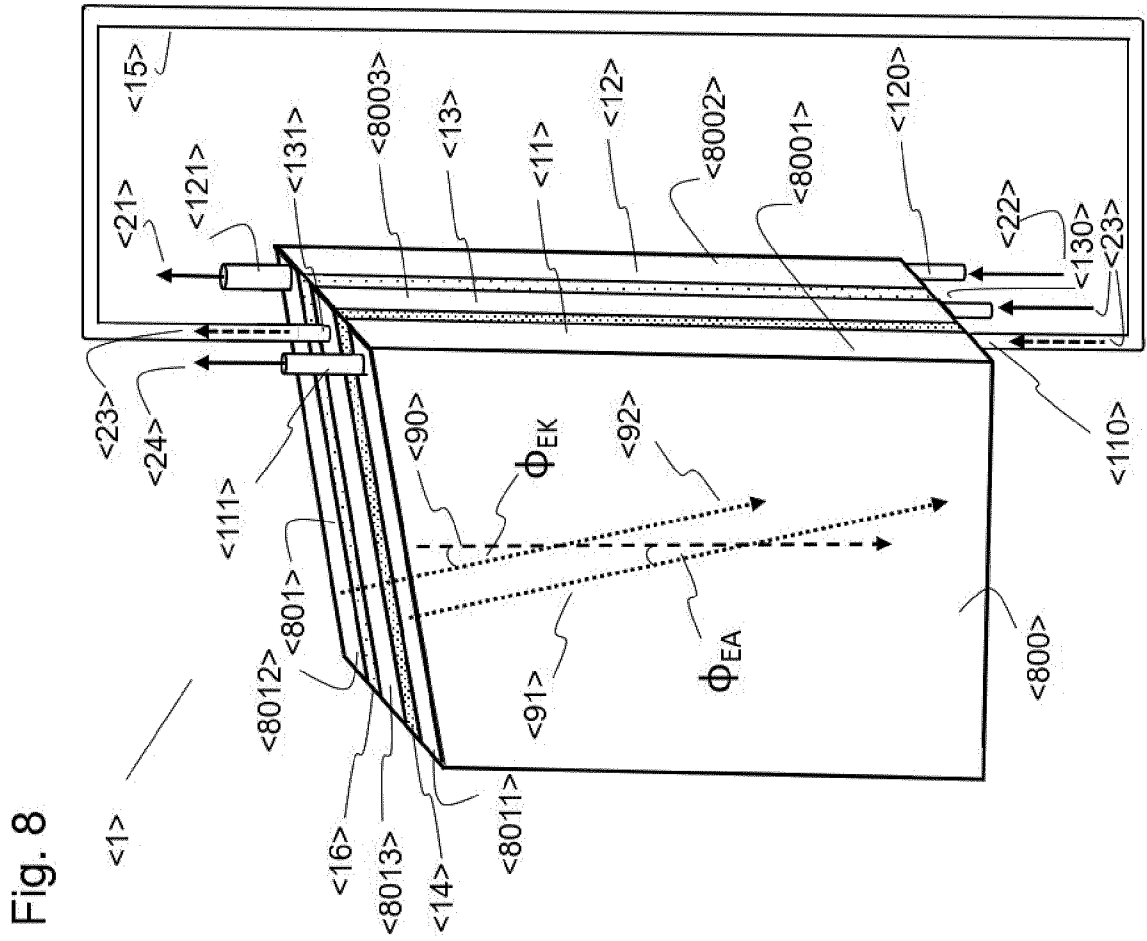


Fig. 8

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP2022/071856

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
<i>C25B 3/07</i> (2021.01)i; <i>C25B 3/20</i> (2021.01)i; <i>C25B 3/25</i> (2021.01)i; <i>C25B 9/01</i> (2021.01)i; <i>C25B 9/13</i> (2021.01)i; <i>C25B 9/19</i> (2021.01)i; <i>C25B 9/21</i> (2021.01)i; <i>C25B 13/07</i> (2021.01)i; <i>C25B 15/08</i> (2006.01)i		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C25B		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) EPO-Internal, WPI Data		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2006226022 A1 (BALAGOPAL SHEKAR [US] ET AL) 12 October 2006 (2006-10-12) cited in the application the whole document	1-13
A	US 2008173540 A1 (JOSHI ASHOK V [US] ET AL) 24 July 2008 (2008-07-24) cited in the application the whole document	1-13
A	US 2007138020 A1 (BALAGOPAL SHEKAR [US] ET AL) 21 June 2007 (2007-06-21) claim 1; figure 1	1-13
A	US 2019292668 A1 (FUJINUMA NAOHIRO [US]) 26 September 2019 (2019-09-26) claim 1; figure 1	1-13
A	US 2012085657 A1 (BHAVARAJU SAI [US]) 12 April 2012 (2012-04-12) cited in the application claims 1, 6, 7, 9, 12; figures 3, 5	1-13
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search <b>25 November 2022</b>		Date of mailing of the international search report <b>12 December 2022</b>
Name and mailing address of the ISA/EP <b>European Patent Office p.b. 5818, Patentlaan 2, 2280 HV Rijswijk Netherlands</b> Telephone No. (+31-70)340-2040 Facsimile No. (+31-70)340-3016		Authorized officer <b>Ritter, Thomas</b> Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

**PCT/EP2022/071856**

<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2010044242 A1 (BHAVARAJU SAI [US] ET AL) 25 February 2010 (2010-02-25) cited in the application claims 1-3, 7, 8, 12; figure 6	1-13
A	US 4430175 A (KREYSA GERHARD [DE] ET AL) 07 February 1984 (1984-02-07) figure 2	1-13

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
**Information on patent family members**

International application No.

**PCT/EP2022/071856**

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
US	2006226022	A1	12 October 2006	NONE	
US	2008173540	A1	24 July 2008	EP 2209931 A2	28 July 2010
				US 2008173540 A1	24 July 2008
				WO 2009073062 A2	11 June 2009
US	2007138020	A1	21 June 2007	EP 1966413 A2	10 September 2008
				JP 4955015 B2	20 June 2012
				JP 2009520884 A	28 May 2009
				US 2007138020 A1	21 June 2007
				WO 2007075865 A2	05 July 2007
US	2019292668	A1	26 September 2019	EP 3768877 A1	27 January 2021
				JP 2021517608 A	26 July 2021
				TW 201940744 A	16 October 2019
				US 2019292668 A1	26 September 2019
				WO 2019182164 A1	26 September 2019
US	2012085657	A1	12 April 2012	EP 2625316 A2	14 August 2013
				US 2012085657 A1	12 April 2012
				WO 2012048032 A2	12 April 2012
US	2010044242	A1	25 February 2010	US 2010044241 A1	25 February 2010
				US 2010044242 A1	25 February 2010
				WO 2010027819 A2	11 March 2010
				WO 2010027825 A2	11 March 2010
US	4430175	A	07 February 1984	AU 9182082 A	30 June 1983
				US 4430175 A	07 February 1984
				ZA 829302 B	28 September 1983

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen  
**PCT/EP2022/071856**

<b>A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES</b>		
<b>INV.</b>	C25B3/07      C25B3/20      C25B3/25	C25B9/01      C25B9/13
	C25B9/19      C25B9/21      C25B13/07	C25B15/08
<b>ADD.</b>		
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC		
<b>B. RECHERCHIERTE GEBIETE</b>		
Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole ) <b>C25B</b>		
Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen		
Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) <b>EPO-Internal, WPI Data</b>		
<b>C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN</b>		
<b>Kategorie*</b>	<b>Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile</b>	<b>Betr. Anspruch Nr.</b>
<b>A</b>	<b>US 2006/226022 A1 (BALAGOPAL SHEKAR [US] ET AL) 12. Oktober 2006 (2006-10-12) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument</b> -----	<b>1-13</b>
<b>A</b>	<b>US 2008/173540 A1 (JOSHI ASHOK V [US] ET AL) 24. Juli 2008 (2008-07-24) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument</b> -----	<b>1-13</b>
<b>A</b>	<b>US 2007/138020 A1 (BALAGOPAL SHEKAR [US] ET AL) 21. Juni 2007 (2007-06-21) Anspruch 1; Abbildung 1</b> -----	<b>1-13</b>
<b>A</b>	<b>US 2019/292668 A1 (FUJINUMA NAOHIRO [US]) 26. September 2019 (2019-09-26) Anspruch 1; Abbildung 1</b> -----	<b>1-13</b>
	-/--	
<input checked="" type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist "E" frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist		"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche		Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
<b>25. November 2022</b>		<b>12/12/2022</b>
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Bediensteter  <b>Ritter, Thomas</b>

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	US 2012/085657 A1 (BHAVARAJU SAI [US]) 12. April 2012 (2012-04-12) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche 1, 6, 7, 9, 12; Abbildungen 3, 5 -----	1-13
A	US 2010/044242 A1 (BHAVARAJU SAI [US] ET AL) 25. Februar 2010 (2010-02-25) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche 1-3, 7, 8, 12; Abbildung 6 -----	1-13
A	US 4 430 175 A (KREYSA GERHARD [DE] ET AL) 7. Februar 1984 (1984-02-07) Abbildung 2 -----	1-13

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

**PCT/EP2022/071856**

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
<b>US 2006226022 A1</b>	<b>12-10-2006</b>	<b>KEINE</b>	
<b>US 2008173540 A1</b>	<b>24-07-2008</b>	<b>EP 2209931 A2</b>	<b>28-07-2010</b>
		<b>US 2008173540 A1</b>	<b>24-07-2008</b>
		<b>WO 2009073062 A2</b>	<b>11-06-2009</b>
<b>US 2007138020 A1</b>	<b>21-06-2007</b>	<b>EP 1966413 A2</b>	<b>10-09-2008</b>
		<b>JP 4955015 B2</b>	<b>20-06-2012</b>
		<b>JP 2009520884 A</b>	<b>28-05-2009</b>
		<b>US 2007138020 A1</b>	<b>21-06-2007</b>
		<b>WO 2007075865 A2</b>	<b>05-07-2007</b>
<b>US 2019292668 A1</b>	<b>26-09-2019</b>	<b>EP 3768877 A1</b>	<b>27-01-2021</b>
		<b>JP 2021517608 A</b>	<b>26-07-2021</b>
		<b>TW 201940744 A</b>	<b>16-10-2019</b>
		<b>US 2019292668 A1</b>	<b>26-09-2019</b>
		<b>WO 2019182164 A1</b>	<b>26-09-2019</b>
<b>US 2012085657 A1</b>	<b>12-04-2012</b>	<b>EP 2625316 A2</b>	<b>14-08-2013</b>
		<b>US 2012085657 A1</b>	<b>12-04-2012</b>
		<b>WO 2012048032 A2</b>	<b>12-04-2012</b>
<b>US 2010044242 A1</b>	<b>25-02-2010</b>	<b>US 2010044241 A1</b>	<b>25-02-2010</b>
		<b>US 2010044242 A1</b>	<b>25-02-2010</b>
		<b>WO 2010027819 A2</b>	<b>11-03-2010</b>
		<b>WO 2010027825 A2</b>	<b>11-03-2010</b>
<b>US 4430175 A</b>	<b>07-02-1984</b>	<b>AU 9182082 A</b>	<b>30-06-1983</b>
		<b>US 4430175 A</b>	<b>07-02-1984</b>
		<b>ZA 829302 B</b>	<b>28-09-1983</b>