

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2003 年 2 月 13 日 (13.02.2003)

PCT

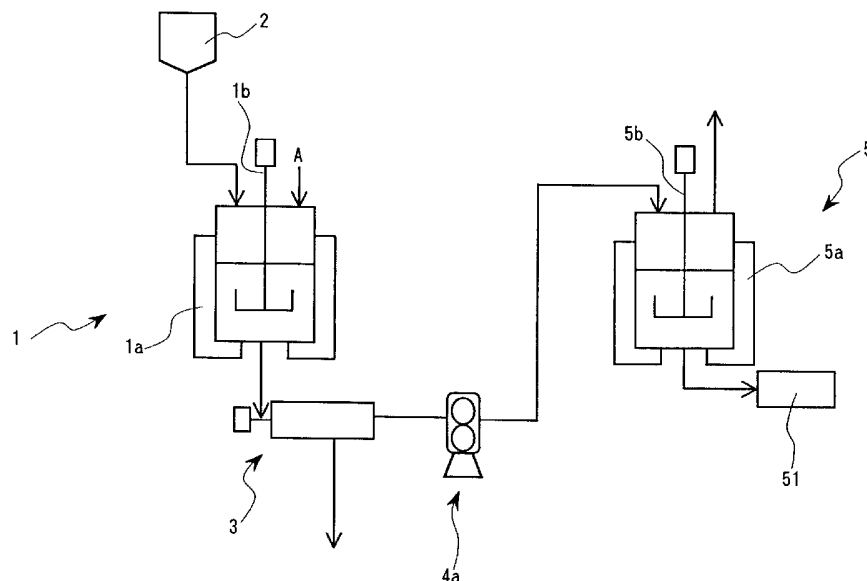
(10) 国際公開番号
WO 03/011956 A1

- (51) 国際特許分類⁷: C08J 11/22 (74) 代理人: 清原 義博 (KIYOHARA, Yoshihiro); 〒530-0002 大阪府 大阪市 北区 曽根崎新地 2 丁目 1 番 2 3 号 Osaka (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP02/07765
- (22) 国際出願日: 2002 年 7 月 30 日 (30.07.2002) (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2001-232607 2001 年 7 月 31 日 (31.07.2001) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社サンエス (KABUSHIKI KAISHA SANESU) [JP/JP]; 〒720-2124 広島県 深安郡 神辺町 大字川南 7 4 1 番地の 1 Hiroshima (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 増成 光夫 (MA-SUNARI, Mitsuo) [JP/JP]; 〒721-0973 広島県 福山市 南蔵王町 4 丁目 3 番 2 2 号 Hiroshima (JP).
- (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SK, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書

[続葉有]

(54) Title: METHOD AND APPARATUS FOR TREATING PLASTIC WASTE CONTAINING POLYSTYRENE BASED PLASTIC CONTAINING FLAME RETARDANT

(54) 発明の名称: 難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法及び処理装置



(57) Abstract: A method for treating a plastic waste comprising a polystyrene based plastic containing a flame retardant, characterized in that it comprises dissolving the plastic waste comprising a polystyrene based plastic containing a flame retardant in a solvent capable of dissolving the polystyrene based plastic, and subjecting the resulting liquid mixture to centrifugal separation, to thereby separate and recover the polystyrene based plastic; and an apparatus for practicing the method. The method

[続葉有]



WO 03/011956 A1



2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

allows the separation of a flame retardant and a polystyrene based plastic contained in a plastic waste and the recovery of both of them with ease and with no excessive heat treatment, which leads to the promotion of the recycle of household electrical appliances.

(57) 要約:

プラスチック系廃棄物を過度な熱処理を伴わずに難燃剤とポリスチレン系プラスチックを極めて容易に分離して、それぞれを回収することができ、廃家電製品のリサイクルを促進することができる難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法及び処理装置を提供することにある。具体的な処理方法は、難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解させた後に、得られた溶液を遠心分離することによりポリスチレン系プラスチックを分離回収することを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチック廃棄物の処理方法とする。

明細書

難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法及び処理装置

技術分野

- 5 本発明は難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法及び処理装置に係り、その目的は、プラスチック系廃棄物を過度な熱処理を伴わずに難燃剤とポリスチレン系プラスチックを極めて容易に分離して、それぞれを回収することができ、廃家電製品のリサイクルを促進することができる難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法及び処理装置を提供することにある。
- 10

背景技術

- 15 特定家庭用機器再商品化法（家電リサイクル法）の施行により、家電業界を中心に電化製品のリサイクルの取り組みが行なわれている。電化製品のリサイクルにおける最大の問題点は、プラスチック製品のリサイクル技術が未だ確立していないことである。特にプラスチック系廃棄物は、（１）同一材料を常に一定量確保できる保証がない、（２）再生材の品質保証の策定と品質保証が困難である、（３）難燃性プラスチック
- 20 のリサイクル技術が確立していない、ことから、プラスチック系廃棄物をマテリアルリサイクルすることは困難であり、現在のところサーマルリサイクルされているのが実情である。

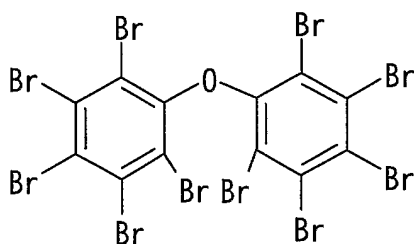
電化製品由来のプラスチック系廃棄物には難燃剤が含まれている。難燃剤とはプラスチックなどの高分子材料を難燃化させるために配合され

る添加剤のことである。そして、最もよく用いられている難燃剤は、次式 1（化 1）に示されるデカブロモジフェニルエーテルに代表されるポリ臭化ジフェニルエーテル（以下、「P B D E」という。）などの臭素系難燃剤である。この臭素系難燃剤は燃焼により臭素ガスを大量に発生

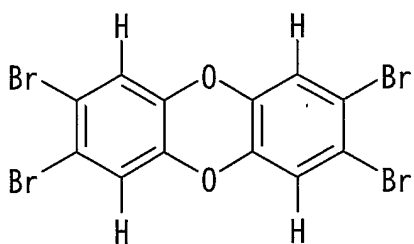
5 するために、ボイラーなどの損傷の原因となる。また P B D E を燃焼処理することで、ダイオキシンと同程度の毒性を有するとされる次式 2（化 2）に示される臭素化ダイオキシンが発生する。したがって、電化製品由来のプラスチック系廃棄物をサーマルリサイクルすることは困難といえる。

10

化 1



化 2



15 さらに、P B D E はプラスチック成型の際の加熱処理によっても、その一部が臭素化ダイオキシンに変化するといわれている。これが事実であれば、プラスチック系廃棄物中にはすでに微量の臭素化ダイオキシンが含まれていることとなる。既に欧米では、プラスチック系廃棄物を処

理する際に微粉末となったプラスチックが周囲に飛散することで、処理作業者や周辺住民の健康を害する危険性が危惧されており、実際に処理作業者の血中から高濃度の臭素化ダイオキシンが検出されている。

また臭素の置換数が3～6個のPBDEがヒトの母乳から検出された
5 との研究報告もある。これは、廃棄されたプラスチックから溶出したPBDEが海に流れて魚介類に蓄積し、この魚介類を食したことが原因と考えられている。置換数が3～6個のPBDEは毒性も高く、また体内における蓄積性も高いことが知られている。しかも、子供の知能に悪影響を与えることが報告されている低塩素化PCBに類似した構造を有す
10 る化合物であり、PBDEの危険性もゼロではない。

一方、現在では、臭素の置換数が3～6個のPBDEは使用されておらず、置換数が8～10個のPBDEが用いられている。この理由は、置換される臭素の数により毒性が異なり、臭素の置換数が3～6個のPBDEは毒性が高いが臭素の置換数が増えるにつれ毒性も低下し、臭素
15 の置換数が10個のPBDEは最も毒性が低くまた体内での蓄積性も低いからである。

しかしながら、臭素の置換数が8～10個のPBDEは光や熱、或いは微生物による分解で容易に置換数が3～6個に減少すると言われている。

20

従来の難燃性プラスチックの処理方法としては、テレビと洗濯機のプラスチックを粉碎後、混合して約350℃に加熱して処理する方法が知られている。この方法では、洗濯機に使われているポリプロピレンから発生する大量の水素が難燃剤の臭素と反応して臭化水素となり、臭素化
25 ダイオキシンの発生を抑制することができるといわれている。

350℃以上の加熱で難燃剤が分解してガス化することはよく知られ

ているが、ポリプロピレンの熱分解ガスの水素だけで発生した臭素が全て臭化水素となるとはかぎらない。また、難燃剤を安易に熱分解することで、難燃剤の熱分解ガスが、他の有機物と反応してフラン等のダイオキシン類に類似した化合物に変化することが報告されている。

- 5 このように、家電製品のプラスチック系廃棄物に含まれる難燃剤は、熱処理すると臭素化ダイオキシンの発生源となり、しかも毒性の低い難燃剤であっても容易に毒性の高い物質に変化することから、難燃剤を過度な熱処理を伴わずに除去することができるプラスチックの処理方法が望まれている。
- 10 本発明者らは、難燃剤を熱処理せずに回収する方法について鋭意研究を行ったところ、難燃剤を含むプラスチックを溶媒に溶解して比重差を利用し分離処理を行うことで、難燃剤を除去することができることを見出し、本発明の完成に至った。

15 発明の開示

- 請求の範囲第1項に係る発明は、難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解させた後に、得られた溶液を遠心分離することによりポリスチレン系プラスチックを分離回収することを特徴とする難燃剤
- 20 含有ポリスチレン系プラスチック廃棄物の処理方法に関する。

- 請求の範囲第2項に係る発明は、難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解させた後に、得られた溶液を遠心分離することにより難燃剤及び／又は難燃助剤を分離回収することを特徴とする難燃剤含
- 25 有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法に関する。

請求の範囲第3項に係る発明は、難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解して、得られた溶液を遠心分離することにより難燃剤及び／又は難燃助剤を含有する画分を得た後に、該画分に難燃剤及び
5 /又は難燃助剤は溶解しないが前記溶媒は溶解し得る溶媒を添加して難燃剤及び／又は難燃助剤を析出させることにより難燃剤及び／又は難燃助剤を分離回収することを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法に関する。

請求の範囲第4項に係る発明は、難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解して、得られた溶液に、該溶液の比重よりも大きく
10 且つ難燃剤及び／又は難燃助剤の比重よりも小さい比重の溶媒を加えて遠心分離することにより、ポリスチレン系プラスチックを含有する画分を分離回収することを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法に関する。
15

請求の範囲第5項に係る発明は、難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解して得られた溶液に、該溶液の比重よりも大きく且
20 かつ難燃剤及び／又は難燃助剤の比重よりも小さい比重の溶媒を加えて遠心分離することにより、難燃剤及び／又は難燃助剤を含有する画分を分離回収することを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法に関する。

請求の範囲第6項に係る発明は、前記請求の範囲第1項又は第4項に記載の難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃
25 棄物の処理方法において、回収されたポリスチレン系プラスチックをさらに脱ハロゲン処理することを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プ

ラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法に関する。

請求の範囲第 7 項に係る発明は、前記請求の範囲第 1 項又は第 4 項に記載の難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法において、回収されたポリスチレン系プラスチックを熱
5 分解して得られた流体と、過酸化水素水とオゾンガスの混合物とを接触させて、該流体中に含まれるダイオキシン類又はダイオキシン類前駆体物質を分解することを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法に関する。

請求の範囲第 8 項に係る発明は、前記請求の範囲第 1 項又は第 4 項に記載の難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法において、回収されたポリスチレン系プラスチックを熱
10 分解して得られた流体と、過酸化水素水とオゾンガスの混合物とを接触させて、該流体中に含まれるダイオキシン類又はダイオキシン類前駆体物質を分解した後に、金属触媒と接触させて脱ハロゲン化することを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系
15 廃棄物の処理方法に関する。

請求の範囲第 9 項に係る発明は、請求の範囲第 1 項乃至第 8 項のいずれかに記載の難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法において、難燃剤含有ポリスチレン系プラスチック
20 を含むプラスチック系廃棄物をポリスチレン系プラスチックを溶解し得るとともにポリスチレン系プラスチック以外のプラスチックを溶媒し難い溶媒に溶解した後に、不溶解物を除去することを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法に関する。

25 請求の範囲第 10 項に係る発明は、前記ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒が、難燃剤及び／又は難燃助剤を溶解し難い溶媒であ

ることを特徴とする請求の範囲第 1 項乃至第 9 項のいずれかに記載の難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法に関する。

請求の範囲第 1 1 項に係る発明は、前記ポリスチレン系プラスチック
5 を溶解し得る溶媒の比重が、ポリスチレン系プラスチックの比重よりも大きいことを特徴とする請求の範囲第 1 項乃至第 1 0 項のいずれかに記載の難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法に関する。

請求の範囲第 1 2 項に係る発明は、プラスチックと該プラスチックと
10 比重を異にする物質が含有されたプラスチック系廃棄物の処理方法であって、該プラスチック系廃棄物を溶解し得る溶媒に溶解して、得られた溶液に該溶液の比重と該物質の比重の間の比重の溶媒を加えて遠心分離することにより、該プラスチックを含む画分を回収することを特徴とするプラスチック系廃棄物の処理方法に関する。

請求の範囲第 1 3 項に係る発明は、プラスチックと該プラスチックと
15 比重を異にする物質が含有されたプラスチック系廃棄物の処理方法であって、該プラスチック系廃棄物を溶解し得る溶媒に溶解して、得られた溶液に該溶液の比重と該物質の比重の間の比重の溶媒を加えて遠心分離することにより、該物質を含む画分を回収することを特徴とするプラスチック系廃棄物の処理方法に関する。
20

請求の範囲第 1 4 項に係る発明は、ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を熱分解して得られた流体と、過酸化水素水とオゾンガスの混合物とを接触させて、該流体中に含まれるダイオキシン類又はダイオキシン類前駆体物質を分解することを特徴とするポリスチ
25 レン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法に関する。

請求の範囲第 1 5 項に係る発明は、ポリスチレン系プラスチックを含

むプラスチック系廃棄物を熱分解して得られた流体と、過酸化水素水とオゾンガスの混合物とを接触させて、該流体中に含まれるダイオキシン類又はダイオキシン類前駆体物質を分解した後に、金属触媒と接触させて脱ハロゲン化することを特徴とするポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法に関する。

請求の範囲第 16 項に係る発明は、難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解させるための溶解槽と、該溶解槽から取り出された溶液を遠心分離するための遠心分離装置と、該遠心分離装置により得られたポリスチレン系プラスチックを含む画分からポリスチレン系プラスチックを回収するためのポリスチレン系プラスチック回収手段とを備えることを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置に関する。

請求の範囲第 17 項に係る発明は、難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解させるための溶解槽と、該溶解槽から取り出された溶液を遠心分離するための遠心分離装置と、該遠心分離装置により得られた難燃剤及び／又は難燃助剤を含む画分から難燃剤及び／又は難燃助剤を回収するための難燃剤回収手段とを備えることを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置に関する。

請求の範囲第 18 項に係る発明は、難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解させるための溶解槽と、該溶解槽から取り出された溶液に該溶液の比重と該難燃剤及び／又は難燃助剤の比重の間の比重の溶媒を供給する供給手段と、該溶解槽から取り出された溶液と該供給

手段によって供給された溶液との混合物を遠心分離するための遠心分離装置と、該遠心分離装置により得られたポリスチレン系プラスチックを含む画分からポリスチレン系プラスチックを回収するためのポリスチレン系プラスチック回収手段とを備えることを特徴とする難燃剤含有ポリ
5 スチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置に関する。

請求の範囲第 19 項に係る発明は、難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解させるための溶解槽と、該溶解槽から取り出され
10 た溶液に該溶液の比重と該難燃剤及び／又は難燃助剤の比重の間の比重の溶媒を供給する供給手段と、該溶液と該中間の比重の溶媒との混合物を遠心分離するための遠心分離装置と、該遠心分離装置により得られた難燃剤及び／又は難燃助剤を含む画分から難燃剤及び／又は難燃助剤を回収するための難燃剤回収手段とを備えることを特徴とする難燃剤含有
15 ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置に関する。

請求の範囲第 20 項に係る発明は、前記請求の範囲第 18 項又は第 19 項に記載の難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置であって、前記遠心分離装置により得られた中間
20 の比重の溶媒を含む画分が、前記供給手段に供給されるように構成されていることを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置に関する。

請求の範囲第 21 項に係る発明は、前記溶解槽から取り出された溶液から不溶解物を除去する除去手段が設けられ、該除去手段により不溶解
25 物が除去された溶液を前記遠心分離装置に供給するように構成されていることを特徴とする請求の範囲第 16 項乃至第 20 項のいずれかに記載

の難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置に関する。

請求の範囲第 2 2 項に係る発明は、ポリスチレン系プラスチックを熱分解する熱分解装置と、オゾンガスを発生するオゾンガス発生装置と、
5 過酸化水素水を貯蔵するための過酸化水素水槽と、該オゾンガス発生装置により発生したオゾンガスと過酸化水素水を混合する混合手段とを備え、該熱分解装置から取り出された流体は該混合手段により混合されたオゾンガスと過酸化水素水の混合物に接触するように構成されていることを特徴とするポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置に関する。
10

請求の範囲第 2 3 項に係る発明は、前記請求の範囲第 2 2 項に記載のポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置において、該熱分解装置から取り出されてオゾンガスと過酸化水素水の混合物に接触した流体を、金属触媒に接触させて脱ハロゲン化する触媒槽
15 を備えることを特徴とするポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置に関する。

図面の簡単な説明

- 図 1 は、本発明の第一実施形態に係るフロー図である。
20 図 2 は、本発明の第二実施形態に係るフロー図である。
図 3 は、本発明の第三実施形態に係るフロー図である。
図 4 は、原料選別工程を示したフロー図である。
図 5 は、熱分解工程を示したフロー図である。

25 発明を実施するための最良の形態

以下、難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系

廃棄物の処理方法及び処理装置について、図面を参照しつつ説明する。

図 1 は本発明の第一実施形態の概略フロー図である。

本発明の第一実施形態の特徴は、難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物からポリスチレン系プラスチックを回収することである。

尚、以下、特に断りの無い場合、難燃剤には難燃助剤を含めて説明する。

本発明においては、使用済み家電製品に代表されるプラスチック系廃棄物、特にポリスチレンを主体とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックが原料（A）とされる。

原料（A）の溶解液としては、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒であれば、特に限定することなく使用することができる。ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒としては、エステル系溶媒、エーテル系溶媒、ラクトン系溶媒、ヒドロフラン系溶媒、ケトン系溶媒、ベンゼン系溶媒、ピロリドン系溶媒、脂肪族ハロゲン系溶媒などを例示することができる。

エステル系溶媒としては、酢酸プロピル（比重：0.887）、酢酸イソプロピル（比重：0.88）、酢酸エチル（比重：0.9066）、酢酸メチル（比重：0.9280）、酢酸ブチル（比重：0.8826）、酢酸イソブチル（比重：0.8712）などを例示することができる。

エーテル系溶媒としては、プロピレングリコールモノメチルエーテル（比重：0.92）などを例示することができる。

ラクトン系溶媒としては、γ-ブチロラクトン（比重：1.1254）などを例示することができる。

ヒドロフラン系溶媒としては、テトラヒドロフラン（比重：0.88

8) 等を例示することができる。

ケトン系溶媒としては、エチレンカーボネート（比重：1.3118）等を例示することができる。

ベンゼン系溶媒としては、トルエン（比重：0.882）、キシレン（比重：0.86）、エチルベンゼン（0.8670）などのアルキルベンゼン系溶媒、スチレン（比重：0.9019）などのアルケニルベンゼン系溶媒、オージクロロベンゼン（比重：1.3）などのハロゲンベンゼン系溶媒などを例示することができる。

脂肪族ハロゲン系溶媒としては、塩化メチレン（比重：1.37）、クロロホルム（比重：1.4985）等を例示することができる。

ピロリドン系溶媒としては、2-ピロリドン系溶媒、より好ましくはN-アルキル-2-ピロリドン系溶媒、最も好ましくはN-メチル-2-ピロリドン（以下、NMPという）（比重：1.027）が用いられる。ピロリドン系溶媒としてNMPが最も好ましく用いられる理由は、NMPはポリスチレン系プラスチックを良く溶かすことができるが、ポリエチレン、ポリプロピレン、ABS樹脂は殆ど溶解することができないという、溶解特性を有するからである。また、NMPは、蒸発熱が105 kcal/kg：204℃と低いために、蒸留を低温で行うことができ、しかも沸点（約204℃）が高いために、自治体環境条例のVOC（揮発性炭化水素類）に関する規制値をクリアすることができる（例えば、大阪府環境規制条例では炭化水素類の規制値は「単体では沸点が150℃以下の物質、混合物では5%留出点が150℃以下のもの」と定められている）。また毒性が極めて低いといった特性を有しているからである。

特に第一実施形態においては、原料（A）の溶解液として、クロロホルム、オージクロロベンゼン、エチレンカーボネート、γ-ブチロラク

トン、プロピレングリコールモノメチルエーテルのうちから選択された一種以上の溶媒を使用することが好ましい。この理由は、これらの溶媒は、ポリスチレン系プラスチックをよく溶解する一方、難燃剤の溶解性に乏しいために、これらの溶媒を使用するとポリスチレン系プラスチックと難燃剤を容易に分離することができるからである。

また第一実施形態においては、ポリスチレン系プラスチックの比重より大きい比重の溶媒を使用することが好ましい。この理由は、ポリスチレン系プラスチックの比重より小さい比重の溶媒を使用すると、後述するように、比重差を利用してポリスチレン系プラスチックと難燃剤を分離する際に、難燃剤を含有する画分にポリスチレン系プラスチックが混入して、ポリスチレン系プラスチックの回収率が低下するからである。ポリスチレン系プラスチックの比重より大きな比重の溶媒としては、γ-ブチロラクトン、エチレンカーボネート、塩化メチレン、クロロホルム、オ-ジクロロベンゼンなどを例示することができる。

15

まず、原料（A）は、溶解槽（1）に供給される。また溶解槽（1）には、原料（A）の溶解液が溶解液槽（2）から供給される。そして、溶解槽（1）において、攪拌羽（1b）により攪拌され、加温ジャケット（1a）により加熱されて、原料（A）は溶解液に溶解される。

原料（A）を溶解液に溶解する際の加熱温度は特に限定されず、使用する溶解液の種類に応じて適宜任意に設定することができるが、大気圧下の場合、30～85℃、好ましくは50～60℃に調整することが好ましい。この理由は、30℃未満の加熱温度では、原料（A）を十分に溶解することができず、また85℃を超えて加熱したとしても、それ以上の効果が望めないばかりか、原料（A）に含まれている難燃剤を分解してしまう可能性があるために、いずれの場合も好ましくないからであ

25

る。

溶解槽（１）において溶解液に溶解された原料（Ａ）（以下、原料溶液という。）は、遠心分離装置（３）に供給されて、遠心分離処理される。原料溶液を遠心分離処理することで、ポリスチレン系プラスチックを含む画分と難燃剤を含む画分とに分離することができる。原料溶液を遠心分離することで、ポリスチレン系プラスチックが含まれる画分は難燃剤が含まれる画分の上層に位置する。

遠心分離処理するだけで、ポリスチレン系プラスチックを含む画分と難燃剤を含む画分とを分離することができる第一の理由は、ポリスチレン系プラスチックに配合される難燃剤は添加型の難燃剤だからである。一般的に、難燃剤は「添加型」と「反応型」に分類することができる。添加型の難燃剤はポリマーに添加して使用する。電化製品に利用されるプラスチックには、添加型の難燃剤が主に用いられている。一方、反応型の難燃剤はプラスチックの製造時にポリマーと反応させて使用する。

第二の理由は、ポリスチレン系プラスチックの比重が一般的に約 1.05～1.12 であるのに対して、難燃剤の比重が約 2～5 であるからである。ポリスチレン系プラスチックに配合される難燃剤は、デカブロモジフェニルエーテル（比重：3.02）等のポリ臭化ジフェニルエーテル（PBDE）、テトラデカブロモ-p-ジフェノキシベンゼン（比重：3.25）、テトラブロモシクロオクタン（比重：2.4）、三酸化アンチモン（比重：5.2～5.4）などであり、いずれもポリスチレン系プラスチック（比重：約 1.05～1.12）に比べて高いことが分かる。

尚、遠心分離処理は、ポリスチレン系プラスチックを含む画分と難燃剤を含む画分とが分離することができる条件であれば特に限定されない。

次に、ポリスチレン系プラスチックが含まれる画分を回収する。ポリ
スチレン系プラスチックが含まれる画分には、少なくともポリスチレン
系プラスチックと溶解液が含まれている。そして、ポリスチレン系プラ
5 スチック回収手段によってポリスチレン系プラスチックと溶解液が分離
されることで、原料（A）からポリスチレン系プラスチックが回収され
る。

ポリスチレン系プラスチック回収手段としては特に限定されないが、
蒸留装置などを例示することができる。

10 ポリスチレン系プラスチック回収手段について、蒸留装置（5）を例
示してさらに詳しく説明すると、まず、ポリスチレン系プラスチックが
含まれる画分はポンプ（4 a）により蒸留装置（5）に供給される。蒸
留装置（5）において、攪拌羽（5 b）により攪拌され、加温ジャケッ
ト（5 a）により加熱されて溶解液が蒸留される。

15 この際の加熱温度は、溶解液を蒸留することができる温度であれば特
に限定されない。例えば、溶解液としてNMPを使用する場合、ポリス
チレン系プラスチックの高圧成型温度は120℃以上であり、250℃
以上ではポリスチレン系プラスチックの分解が危惧されるために、また
低温であるとポリスチレン系プラスチックの流動性が低下するために、
20 大気圧下の場合、204～250℃、好ましくは210～230℃とされ
る。また蒸留装置（5）内を減圧することもできる。この場合の加熱
温度は特に限定されないが、150～200℃、好ましくは170～1
90℃とされる。尚、210～230℃に加熱されて蒸留された場合、
流動性が良好であるために取り扱いが容易であり、ポリスチレン回収槽
25 （51）への供給を容易に行うことができる。また回収されたポリスチ
レン系プラスチックを熱分解してスチレンモノマーとして回収する場合

も、搬送が容易である。

溶解液としてγ-ブチロラクトンを使用した場合、大気圧下では、203～250℃、好ましくは210～230℃とされる。また蒸留装置(5)内を減圧した場合、150～200℃、好ましくは160～190℃とされる。

また溶解液としてスチレンを使用した場合、大気圧下では、145～250℃、好ましくは160～230℃とされる。尚、スチレンは空气中で重合するので、不活性ガス雰囲気下で行う。また蒸留装置(5)内を減圧した場合、95℃以下、好ましくは90℃以下とされる。

10 蒸留装置(5)によって蒸留された溶解液は、冷却手段(図示せず)により冷却されて溶解液槽(2)に回収することで、再利用することができる。

また溶解液が除去されたポリスチレン系プラスチックはポリスチレン回収槽(51)に回収される。このポリスチレン系プラスチックは難燃剤が除去されているために、マテリアルリサイクルプラスチックとして使用することができる。

また380℃以上、好ましくは約410℃に加熱されてスチレンモノマーに熱分解して回収することで、ケミカルリサイクルプラスチックとして使用することもできる。この場合、回収されたポリスチレン系プラスチック中の臭素成分等のハロゲン含有量を200ppm以下にすることで、熱分解工程においてJIS規格の100ppm(好ましくは20ppm)以下にでき、再生スチレンモノマーとして利用することができる。仮に熱分解工程で100ppm以下とすることができなかったとしても、真空蒸留工程で容易に除去することができる。また臭素成分の含有量は含まれていたとしても極めて微量であるために、装置を傷めることがない。

さらには、ハロゲン含有量は3000ppm以下であるから、サーマルリサイクルプラスチック、すなわち、固形燃料として使用することもできる。ハロゲン含有量が3000ppm以下であれば、燃焼排ガスで装置が腐食損傷しないことは多くの廃油の再生油等で実証されている。

- 5 なお、プラスチック廃棄物を固形燃料とする場合、わずかでも難燃剤の混入があれば、臭素化ダイオキシンの発生につながる可能性がある。本発明では、難燃剤が除去されているために、臭素化ダイオキシンの発生を抑制することができ、ダイオキシンの防止対策の軽減につながる。

- 10 以上説明したとおり、難燃剤を含有するポリスチレン系プラスチックから難燃剤を低温加熱だけで除去することができ、マテリアルリサイクル、ケミカルリサイクル、サーマルリサイクルにおいて使用することができるポリスチレン系プラスチックを得ることができる。

次に、本発明の第二実施形態について、図面を参照しつつ説明する。

- 15 図2は本発明の第二実施形態の概略フロー図である。

本発明の第二実施形態は、難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックから難燃剤を回収することを特徴とする。

- 20 使用済み家電製品に代表されるプラスチック系廃棄物、特にポリスチレンを主体とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックが原料（A）とされる。また原料（A）の溶解液としては、上記第一実施形態において例示したような溶媒を使用することができる。

- 25 特に、第二実施形態においては、ポリスチレン系プラスチックの比重より大きい比重の溶媒を使用することが好ましい。この理由は、ポリスチレン系プラスチックの比重より小さい比重の溶媒を使用すると、後述するように、比重差を利用してポリスチレン系プラスチックと難燃剤を

分離する際に、難燃剤を含む画分にポリスチレン系プラスチックが混入して、難燃剤のみを分離回収することが困難になるからである。ポリスチレン系プラスチックの比重より大きな比重の溶媒としては、γ-ブチロラクトン、エチレンカーボネート、塩化メチレン、クロロホルム、
5 ージクロロベンゼンなどを例示することができる。

また、第二実施形態においては、ポリスチレン系プラスチックをよく溶解する一方、難燃剤の溶解性に乏しい溶解液を使用することが好ましい。この理由は、溶解液と難燃剤の分離を容易に行うことができ、難燃剤のみを分離回収し易くなるからである。ポリスチレン系プラスチック
10 をよく溶解する一方、難燃剤の溶解性に乏しい溶解液としては、クロロホルム、ージクロロベンゼン、エチレンカーボネート、γ-ブチロラクトン、プロピレングリコールモノメチルエーテルなどを例示することができる。

15 まず、この原料（A）は、溶解槽（1）に供給される。また溶解槽（1）には溶解液が溶解液槽（2）から供給される。そして、溶解槽（1）において、攪拌羽（1b）により攪拌、加温ジャケット（1a）により加熱されて、原料（A）は溶解液に溶解される

次に、溶解槽（1）において溶解液に溶解された原料（A）（原料溶
20 液）は、遠心分離装置（3）に供給されて、遠心分離処理される。原料溶液を遠心分離処理することで、ポリスチレン系プラスチックを含む画分と難燃剤を含む画分に分離することができる。ポリスチレン系プラスチックを含む画分は、難燃剤が含まれる画分の上層に位置する。以上の工程までは第一実施形態と同様である。

25 遠心分離装置（3）によって得られた難燃剤が含まれる画分には、少なくとも難燃剤と溶解液が含まれているから、溶解液除去手段によって

溶解液を取り除くことで、難燃剤を回収することができる。

図 2 に難燃剤回収手段の一例を示す。図 2 に示す難燃剤回収手段は、
難燃剤が含まれる画分に、難燃剤は溶解しないが溶解液は溶解すること
ができる溶媒を添加して、難燃剤を析出させることで難燃剤が回収され
5 る。

以下、難燃剤は溶解しないが溶解液を溶解することができる溶媒（以
下、難燃剤非溶解溶媒という。）を使用した場合を例示して、難燃剤回
収手段について詳しく説明する。

まず、遠心分離装置（3）によって得られた難燃剤が含まれる画分は、
10 ポンプ（4 b）によって回収槽（6）に投入される。回収槽（6）には
さらに難燃剤非溶解溶媒槽（12）から難燃剤非溶解溶媒が投入される。
そして、攪拌羽（6 b）により攪拌され、温度調整ジャケット（6 a）
により液温が調整される。溶解液は難燃剤非溶解溶媒に溶解することが
できるが、難燃剤は難燃剤非溶解溶媒に溶解しないために、難燃剤は析
15 出する。ポンプ（4 b）としては、特に限定されないが、モノーポンプ
が好ましい。

次に、回収槽（6）中の液体などは分離手段（7）に供給される。分
離手段（7）によって、析出した難燃剤と難燃剤非溶解溶媒／溶解液混
合液とに分離される。難燃剤は難燃剤回収槽（8）に回収される。一方、
20 難燃剤非溶解溶媒／溶解液の混合液はポンプ（4 c）によって蒸発槽（9）
に供給される。

分離手段（7）は特に限定されないが、ろ過装置や遠心分離装置など
を例示することができる。

蒸発槽（9）に投入された難燃剤非溶解溶媒／溶解液の混合液は、攪
25 拌羽（9 b）により攪拌され、加温ジャケット（9 a）により加熱され
る。これにより、難燃剤非溶解溶媒と溶解液が分離される。

難燃剤非溶解溶媒／溶解液の混合液の液温は、溶解液又は難燃剤非溶解溶媒のいずれか一方が蒸発する温度であれば特に限定されない。また蒸発槽（９）内を減圧することもできる。

5 分離された難燃剤非溶解溶媒は必要に応じて冷却装置（１１）に供給される。冷却装置（１１）により冷却された難燃剤非溶解溶媒は難燃剤非溶解溶媒槽（１２）に回収されて再利用される。

一方、難燃剤非溶解溶媒と分離した溶解液は溶解液回収槽（１０）に回収され、再び溶解液槽（２）などに供給されて、再利用される。

10 本発明の第二実施形態は、ポリスチレン系プラスチックを含有する廃棄物から難燃剤を回収することができる。しかも、過度な加熱処理は行なわれないために、難燃剤が分解してダイオキシン類似の化合物の発生や臭化水素などの発生は全くない。しかも、難燃剤を分解せずに回収することができるために、今までの技術では不可能であった、難燃剤のリサイクルが可能である。

15 尚、説明するまでもないが、第一実施形態と第二実施形態を併用することで、ポリスチレン系プラスチックの回収と難燃剤の回収を平行して行うことができる。

20 次に、本発明の第三実施形態について図面を参照しつつ説明する。図３は本発明の第三実施形態に係るフロー図である。

本発明の第三実施形態は、難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを、ポリスチレン系プラスチックを含有する画分と難燃剤を含有する画分とに分離する際に、原料溶液の比重より大きく難燃剤の比重より小さい比重の溶媒を加えて、ポリスチレン系プラスチックと難燃剤をそれぞれ回収することを特徴とする。

25 上述したように、第二実施形態においても難燃剤含有ポリスチレン系

プラスチックから難燃剤を回収することができるが、使用する溶解液の比重によっては、難燃剤層にポリスチレン系プラスチックが混入することがあり、難燃剤のみを回収することが困難な場合がある。本発明の第三実施形態では、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒であれば、全ての種類の溶媒を使用してポリスチレン系プラスチックと難燃剤とをそれぞれ分離回収することができる。

使用済み家電製品に代表されるプラスチック系廃棄物、特にポリスチレンを主体とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックが原料（A）とされる。また原料（A）の溶解液としては、上記第一実施形態において例示したような、難燃剤を溶解し得る溶媒を使用することができる。

まず、この原料（A）は、溶解槽（1）に供給される。また溶解槽（1）には溶解液が溶解液槽（2）から供給される。そして、溶解槽（1）において、攪拌羽（1b）により攪拌、加温ジャケット（1a）により加熱されて、原料（A）は溶解液に溶解される。

次に、溶解槽（1）において溶解液に溶解された原料（A）（原料溶液）は、ポンプ（4d）により遠心分離装置（3）に供給される。これと同時に、ポンプ（4e）によって、原料溶液の比重よりも大きい比重であり且つ難燃剤（即ち、原料溶液から分離する目的物質）の比重よりも小さい比重の溶媒（以下、中間液という。）が供給される。原料溶液と中間液は混合された状態で遠心分離装置（3）に供給される。

中間液の好ましい比重は1.2～1.8、より好ましい比重は1.2～1.45である。比重を1.2以上とした理由は、ポリスチレン系プラスチックを様々な溶解液で溶解した場合の原料溶液の比重は概ね1.2未満となり、中間液の比重を1.2以上とすることで、ポリスチレン系プラスチックと難燃剤の分離を好適に行うことができるからである。

尚、溶解液としてハロゲン系溶媒を使用する場合は、原料溶液の比重が 1.2 を超える場合がある。この場合は、中間液の比重を適宜調整する。また比重を 1.8 以下とした理由は、ポリスチレン系プラスチックに着色剤として含まれるカーボンの比重が約 1.8 程度であるために、中間液の比重を 1.8 以下とすれば、ポリスチレン系プラスチックから難燃剤を分離回収する際に、同時に着色剤も分離することからである。この段階でカーボンを分離回収することで、例えば、ポリスチレン系プラスチックをスチレンモノマーに熱分解してケミカルリサイクルする際に、カーボンによるトラブルの発生を未然に防ぐことができ、装置にかかる負担を低減することが可能となる。

前記した比重の範囲内であれば、一種類の溶媒を中間液として使用することもでき、また二種以上の溶媒を混合して使用することもできる。中間液として使用することができる溶媒としては、例えば、硝酸鉛水溶液、硝酸銀水溶液、硝酸鉄水溶液等を例示することができる。

また原料溶液に対する中間液の供給量は特に限定されないが、原料溶液 1 重量部当り、10～50 重量部、好ましくは 20～30 重量部とされる。

原料溶液と中間液の混合物は遠心分離装置（3）に供給されて、遠心分離される。遠心分離することにより、ポリスチレン系プラスチックが溶解された溶解液層（上層）と、中間液層（中間層）と、難燃剤や着色剤が含まれる層（下層）、の三層に分離する。

遠心分離装置（3）によって得られた溶解液層には、少なくともポリスチレン系プラスチックと溶解液が含まれている。そして、ポリスチレン系プラスチック回収手段によってポリスチレン系プラスチックと溶解液が分離されることで、原料（A）からポリスチレン系プラスチックが

回収される。

ポリスチレン系プラスチック回収手段としては特に限定されないが、第一実施形態において示した蒸留装置（５）などを例示することができる。

- 5 また遠心分離装置（３）によって得られた中間液層には中間液のみが含まれているから、中間液回収槽（３１）に回収するとともに、ポンプ（４e）によって供給することで、中間液を循環再利用することができる。

- 10 さらに、遠心分離装置（３）によって得られた難燃剤、難燃助剤（代表的には、三酸化アンチモン）や着色剤は、難燃剤回収槽（３２）に回収される。この画分には、ポリスチレン系プラスチックなどは含まれていない。さらに必要に応じて、難燃剤回収手段（図示せず。）や難燃助剤回収手段等によって難燃剤と難燃助剤や着色剤を分離することで、それぞれを回収することができる。

- 15 難燃剤と代表的な難燃助剤である三酸化アンチモンと着色剤を分離するには、例えば、三酸化アンチモンについては塩酸で溶解し、水で希釈した後、過酸化水素を添加して五酸化アンチモンとして析出回収する。脱アンチモン化した後、難燃剤については700～900℃程度で分解し、発生した臭素ガスを炭酸ナトリウム溶液に吸収させる。次いで塩素
20 ガスを注入して臭素を回収することで、難燃剤の原料に再利用することができる。着色剤については加熱時に分解される。

- 25 尚、上述した第三実施形態において、難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックをポリスチレン系プラスチックと難燃剤に分離する方法を例示して説明したが、ポリスチレン系プラスチック以外のプラスチック中に含まれる物質を分離する方法としても使用することができる。

即ち、原料とされるプラスチック系廃棄物を、該プラスチックを溶解し得る溶媒（溶解液）に溶解して原料溶液とした後に、該原料溶液と原料中から分離する目的の物質の比重の間の比重の溶媒（中間液）を加えて、遠心分離処理を行う。そうすると、プラスチックを溶解する溶解液層と、中間液層と、目的の物質を含む層、の三層に分離することができ、
5 それぞれの層を回収することで、プラスチック中に含まれる該プラスチックと比重を異にする物質を分離回収することができる。

以上説明した第一乃至第三実施形態においては、供給される原料（A）
10 がポリスチレン系プラスチックのみである場合には有効であるが、現実的にプラスチック系廃棄物には、ポリスチレン系プラスチックのほか、ポリエチレン、ポリプロピレン、ABS樹脂などの異種合成プラスチック、或いはガラス、金属などの不純物が混合している。このように、異種合成プラスチックや不純物が混合した原料（A）を使用する場合は、
15 まず原料の選別が行なわれる。以下、図4を参照しつつ、この原料選別工程について説明する。

原料選別工程では、ポリスチレンを主体とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックに加えて、ポリエチレン、ポリプロピレン、ABS樹脂などの異種合成プラスチック、或いは金属、ガラスなどの不純物が混
20 入したプラスチック系廃棄物が原料（A）とされ、これらの原料（A）はまず破砕機（13）に供給されて一定大きさ以下に破砕された後、一旦貯蔵タンク（14）に貯蔵される。そして、この貯蔵タンク（14）に貯蔵された原料（A）に対して、ポリエチレン、ポリプロピレン、ABS樹脂などのポリスチレン系プラスチック以外のプラスチックは実質
25 的に溶解せずに、ポリスチレン系プラスチックを選択的に溶解することができる溶媒を溶解液槽（2）から添加する。

ポリスチレン系プラスチックを選択的に溶解することができる溶解液としては、NMP、スチレンモノマー、γ-ブチロラクトンなどを例示することができる。

原料（A）は供給された前記溶解液と共に輸送用コンベア（15）によって溶解槽（16）へ送られる。溶解槽（16）において加熱、攪拌されてポリスチレン系プラスチックが選択的に溶解される。前記溶解液のうち例えば、NMPの比重は約1.027であり、スチレンの比重は、0.902であり、γ-ブチロラクTONの比重は、1.144であるために、その他のプラスチック成分である、ポリエチレン、ポリプロピレン、ABS樹脂などの異種合成プラスチックは前記溶解液中に浮遊又は分散した状態となる。またガラス、金属などの不純物は前記溶媒に比べて明らかに比重が大きいため、溶解槽（16）内に沈殿する。

溶解槽（16）内に沈殿したガラスや金属類は不純物回収槽（18）に回収される。またポリプロピレン系プラスチックが溶解した溶液は、溶液中に浮遊又は分散したほかのプラスチック成分とともにポンプ（17）によって分離装置（19）へと送られる。分離装置（19）は溶液中の未溶解物であるプラスチック成分を除去するための除去手段であり、遠心分離機や濾過装置などを例示することができる。分離装置（19）では前記溶解液に溶解しないポリエチレン、ポリプロピレン、ABS樹脂などの異種合成プラスチックが溶液から分離除去され、除去物は不溶解物回収槽（20）に回収されて、固形燃料や液体燃料の原料として再利用される。

異種合成プラスチックが除去された溶液は、必要に応じて前記溶解液が除去された後に、第一実施形態および第二実施形態における溶解槽（1）または直接に遠心分離装置（3）に供給されて、所要の処理が施される。

このような原料選別手段を設けることによって、異種合成プラスチックや金属、ガラスなどの不純物が混合した廃棄物からポリスチレンリッチな原料を得ることができる。この原料を使用することで、最終的に回収されるポリスチレン系プラスチック又は難燃剤の純度や収率を上昇することができる。

また、上記した第一実施形態や第三実施形態において回収されたポリスチレン系プラスチックをケミカルリサイクルしてスチレンモノマーを回収する場合、熱分解工程が行われる。しかしながら、難燃剤を除去したポリスチレン系プラスチックであっても、熱分解工程で発生する臭素ガスが原因となり、ダイオキシン類前駆体物質或いはダイオキシン類の発生が危惧される。そこで、熱分解工程により得られた流体に、オゾンガスと過酸化水素の混合物（以下、活性水という。）を混合することで、熱分解工程により得られた流体中に含まれる可能性があるダイオキシン類又はダイオキシン類前駆体物質を分解することができる。

以下、図5を参照してより詳細に説明する。図5はスチレンモノマーを回収する熱分解工程のフロー図である。

ポリスチレン系プラスチック原料（B）は、スチレンモノマーを主成分とする溶媒に溶解された状態又は加熱溶融された状態で、混合手段（100）に供給される。さらに、混合手段（100）には、400～700℃、好ましくは500～600℃の過熱蒸気（SHS）が供給されて、原料（B）と混合される。過熱蒸気としては、過熱水蒸気又は過熱スチレンモノマー蒸気を例示することができる。

混合手段（100）により混合された過熱蒸気（SHS）と原料（B）は、セラミック製の固定床反応器（110）に供給される。固定床反応

器（１１０）は、触媒若しくは不活性充填物の充填層を備えた固定床方式が採用され、原料（Ｂ）は、過熱蒸気（ＳＨＳ）により与えられる少なくとも３８０℃以上、好ましくは４１０～４５０℃の高温により分解される。

- ５ 固定床反応器（１１０）を通過した流体は、活性水添加槽（１４０）に供給される。活性水添加槽（１４０）には、オゾンガス発生装置（１３０）により発生したオゾンガスと過酸化水素水槽（１２０）から供給された過酸化水素水が混合された活性水が供給される。固定床反応器（１１０）を通過した流体は、活性水添加槽（１４０）において活性水と混合される。活性水は、オゾンガスと過酸化水素水の混合物であるから、
- １０ ＯＨラジカルが生成して強い酸化力を有する液体であり、固定床反応器（１１０）を通過した流体に含まれるダイオキシン類又はこの前駆体物質を分解することができる。

- オゾンガスと過酸化水素水の混合比は特に限定されないが、オゾンガス
- １５ ス１重量部に対して、過酸化水素水を２．０～４．０重量部、好ましくは３．５～３．８重量部程度混合すればよい。

- また固定床反応器（１１０）を通過した流体に混合する活性水の量は、特に限定されないが、該流体１Nm³/hに対して、活性水を４．３g/h～８．６g/h、好ましくは７．５g/h～８．１g/h程度混合
- ２０ すればよい。

- 活性水添加槽（１４０）を通過した流体は、触媒槽（１５０）に供給される。触媒槽（１５０）には、鉄、鉄触媒、亜鉛、アルミニウム、銅、ニッケル等の金属触媒が充填されており、活性水添加槽（１４０）から供給された流体はこれらの金属触媒に接触することによって脱ハロゲン
- ２５ 化することができる。例えば、活性水添加槽（１４０）を通過した流体に含まれていた臭素成分は、酸化鉄などと反応することでFeBr₂や

FeBr_3 などとして、触媒槽（150）の底部から回収される。

触媒槽（150）を通過した流体は、粗製スチレンモノマーとして回収される。

尚、スチレンモノマーを回収するための熱分解工程として、セラミック製固定床反応器で過熱水蒸気又は過熱スチレンモノマー蒸気（低圧高温蒸気）を熱源として供給して分解する方法を例示して説明したが、この他の熱分解工程においても、熱分解工程により発生した流体に活性水を添加することで、ダイオキシン類やこの前駆体物質を分解することが可能である。

10

実施例

以下、本発明を実施例に基づき詳細に説明するが、本発明は以下の実施例により何ら限定されるものではない。

（試験例1）

15 ポリスチレン系プラスチックを溶解し得るとともに、難燃剤を溶解し難い溶媒を、日本薬局方通則第22条に規定される方法を参照して選定した。

難燃剤として従来からテレビキャビネット等に多く使用されている代表的難燃剤であるデカブロモジフェニルエーテル0.5gを、表1に記載の溶媒50mLに添加して溶解試験を行った。結果を表1に記載する。

20

表 1

溶媒	攪拌	超音波分散	加温
	可溶分量 (%)	可溶分量 (%)	可溶分量 (%)
クロロホルム	37.5	35.6	57.2
テトラヒドロフラン	98.9	>99.9	-
0-ジクロロベンゼン	78.1	89.9	>99.9
スチレン	90.9	94.5	>99.9
エチレンカーボネート	6.0	5.4	6.5
N-メチル-2-ピロリドン	>99.9	-	-
γ-ブチロラクトン	3.8	4.5	5.9
プロピレングリコール モノメチルエーテル	8.0	6.8	7.4

表 1 の結果に示されるように、クロロホルム、エチレンカーボネート、γ-ブチロラクトン、プロピレングリコールモノメチルエーテルは、難燃剤の溶解性に乏しいことが示された。

5

(実施例 1)

ポリスチレン系プラスチックとして、エー・アンド・エム・スチレン株式会社製の商品名「A & M ポリスチレン」(グレード; V S 5 1) (ブタジエーン-スチレン共重合体と難燃剤、難燃助剤からなる混合物) を 5
10 倍容量の N-メチル-2-ピロリドン (三菱化学社製) に溶解した。この溶液 5 0 m L を遠心沈殿瓶 (合計 4 本) に入れて、島津理化器機社製の遠心分離機 L C - 1 2 0 (商品名) を使用して 8 0 0 0 r p m で約 5 分間処理を行った。

尚、使用した A & M ポリスチレンには、7 0 質量% 以上のブタジエーン-スチレン共重合体、2 0 質量% 以下の臭素系難燃剤、2 . 9 ~ 4 . 9 質量% の三酸化アンチモン、1 ~ 5 質量% の鉍油、3 質量% 以下のその他の添加剤が含まれている。

処理を行った遠心沈殿瓶は、上部より 43 mL までは NMP とプラスチック成分であった。臭素成分は 5600 ppm 以下であった。上部より 43 ～ 50 mL では、プラスチック成分を含む高粘度成分であった。これを取り出した後に分析したところ、臭素成分と三酸化アンチモンが
5 検出された。

以上の結果から、NMP 及びプラスチック成分と難燃剤を比重の違いにより粗分離できることが判明した。また臭素含有率 100,000 ppm 程度の原料から 94 % 以上の難燃剤が分離回収できることが判明した。

10

(実施例 2)

シャープ社製のテレビのハウジング（製品名、グレード等は不明）の粉碎物を 3 倍容量の N-メチル-2-ピロリドン（三菱化学社製）に溶解した。この溶液 50 mL を遠心沈殿瓶（合計 4 本）に入れて、島津理
15 化器機社製の遠心分離機 LC-120（商品名）を使用して 8000 rpm で約 5 分間処理を行った。

処理を行った遠心沈殿瓶は、上部より 43 mL までは NMP とプラスチック成分であった。臭素成分は 4300 ppm 以下であった。上部より 43 ～ 50 mL では、プラスチック成分を含む高粘度成分であった。これを取り出して分析したところ、臭素成分と三酸化アンチモンが検出
20 された。

以上の結果から、NMP 及びプラスチック成分と難燃剤を比重の違いにより粗分離できることが判明した。原料のテレビハウジングの臭素含有量は 89,500 ppm であり、難燃剤の除去率は 95.2 % であっ
25 た。

(実施例 3)

ポリスチレン系プラスチックとして、エー・アンド・エム・スチレン株式会社製の商品名「A & Mポリスチレン」(グレード; VS 29)を5倍容量の γ -ブチロラクトンに溶解した。この溶液120 gを遠心沈殿瓶(合計2本)に入れて、久保田商事社製の高速冷却遠心機6930(商品名)を使用して8000 rpmで約5分間処理を行った。

尚、使用したA & Mポリスチレンには、108.500 ppmの臭素成分が含まれていた。

処理を行った遠心沈殿瓶から γ -ブチロラクトン層(上層)を回収して臭素成分の含有量を測定したところ、4.035 ppmであり、96.281%の臭素成分を除去することができた。

(実施例 4)

ポリスチレン系プラスチックとして、エー・アンド・エム・スチレン株式会社製の商品名「A & Mポリスチレン」(グレード; VS 29)を50℃以下の温度条件で5倍容量のスチレンモノマー(比重: 0.9019)(エー・アンド・エム・スチレン株式会社製)に溶解した溶液100 gに対して、中間液(比重を1.410に調整した硝酸銀水溶液50 g)を加えて合計150 gの溶液量とした。

この溶液150 gを遠心沈殿瓶(一本の遠心沈殿瓶に試料を、もう一本の遠心沈殿瓶には同重量の水を入れた合計2本)に入れて、久保田商事社製の高速冷却遠心機6930(商品名)を使用して8000 rpmで約5分間処理を行った。

尚、使用したA & Mポリスチレンには、108.500 ppmの臭素成分が含まれていた。

処理を行った遠心沈殿瓶は、上層(スチレンモノマー+ポリスチレン

系プラスチック層)、中間層(中間液層)、下層の三層に分離していた。

上層のポリスチレン系プラスチック層を回収して分析したところ、臭素の含有量は2.271ppmまで低下しており、実に97.90%を除去することができた。

- 5 中間層を回収したところ、ポリスチレン系プラスチックや臭素成分及び三酸化アンチモン成分の混合は無かった。

この結果から、中間液を使用することで、遠心分離という簡単な手法により、難燃剤を高い除去率で除去することができることが示された。

10 (実施例5)

ダイオキシン類前駆体物質物質として、クロロベンゼン及びクロロフェノールを使用して、前記前駆体物質にオゾンガスと過酸化水素水の混合物を接触させた場合の前記前駆体物質の分解の程度を以下の方法により実験して分析を行った。

- 15 過熱蒸気と前駆体物質とを混合して410℃の温度条件で、前駆体物質含有ガス1Nm³/hに対して2.14g/hの比率で活性水を噴霧して混合液中のダイオキシン類前駆体物質の直接分解試験を行った。

この結果、オゾン-過酸化水素水供給比(過酸化水素水重量/オゾン重量)では、2.0~4.0倍で特に効果があり、3.6倍が最も効果
20 があり、99%以上の分解能を有することを確認した。

発明の効果

- 以上詳述した如く、請求の範囲第1項に係る発明は、過度な加熱処理をすることなくプラスチック系廃棄物からポリスチレン系プラスチック
25 を極めて容易に回収することができる。しかも、このポリスチレン系プラスチックには難燃剤が大幅に除去されているために、マテリアルリサ

イクルの原料として、或いはサーマルリサイクル、更にケミカルリサイクルでスチレンモノマーを回収する原料として極めて有用である。

請求の範囲第 2 項及び第 3 項に係る発明は、過度な加熱処理をすることなくプラスチック系廃棄物から難燃剤を極めて容易に回収することができる。しかも、回収された難燃剤は分解されていないために、今までは不可能であった難燃剤のリサイクルが可能である。

請求の範囲第 4 項に係る発明は、ポリスチレン系プラスチックの比重と難燃剤の比重との間の比重の中間液を使用することで、ポリスチレン系プラスチックに難燃剤が混入する割合を大きく減少させることができる。

請求の範囲第 5 項に係る発明は、ポリスチレン系プラスチックの比重と難燃剤の比重との間の比重の中間液を使用することで、難燃剤にポリスチレン系プラスチックが混入する割合を大きく減少させることができる。

請求の範囲第 6 項に係る発明は、プラスチック系廃棄物から回収されたポリスチレン系プラスチック中のハロゲンを取り除くことで、ケミカルリサイクルの原料として使用した場合も、熱分解スチレンモノマー回収工程で環境や設備に悪影響を与えることがなく、負担を軽減してスチレンモノマーの回収が行える。

請求の範囲第 7 項及び第 8 項に係る発明は、ポリスチレン系プラスチックを熱分解してケミカルリサイクルする際に、ダイオキシン類前駆体物質又はダイオキシン類を分解することができ、ダイオキシン類の発生を低減することができる。

請求の範囲第 9 項に係る発明は、プラスチック系廃棄物中に含まれる金属、ガラス、或いはポリスチレン系プラスチック以外のプラスチックを容易に除去することで、回収される難燃剤やポリスチレン系プラスチ

ックの純度を向上することができる。

請求の範囲第 10 項に係る発明は、ポリスチレン系プラスチックと難燃剤の分離回収を効率よく行うことができる。

請求の範囲第 11 項に係る発明は、ポリスチレン系プラスチックの難燃剤への混合量を低減することができる。

請求の範囲第 12 項に係る発明は、プラスチックに混合されているプラスチックとは比重を異にする物質と、プラスチックを簡単な方法で分離してプラスチックを回収することができる。

請求の範囲第 13 項に係る発明は、プラスチックに混合されているプラスチックとは比重を異にする物質と、プラスチックを極めて簡単な方法で分離して該物質を回収することができる。

請求の範囲第 14 項及び第 15 項に係る発明は、ポリスチレン系プラスチックを熱分解してケミカルリサイクルする際に、ダイオキシン類前駆体物質又はダイオキシン類を分解することができ、ダイオキシン類の発生を極めて低減することができる。

請求の範囲第 16 項及び第 18 項に係る発明は、難燃剤含有プラスチック系廃棄物から難燃剤が含まれていないポリスチレン系プラスチックを分離回収できる装置を提供することができる。

請求の範囲第 17 項及び第 19 項に係る発明は、難燃剤含有プラスチック系廃棄物から難燃剤を分離回収できる装置を提供することができる。

請求項 20 に係る発明は、中間液を循環再利用することがえきる装置を提供することができる。

請求の範囲第 21 項に係る発明は、プラスチック系廃棄物に含まれる金属、ガラス、或いは異種プラスチックを極めて容易に分離して取り除くことができるために、純度の高いポリスチレン系プラスチック又は難燃剤を分離回収できる装置を提供することができる。

請求の範囲第 2 2 項及び第 2 3 項に係る発明は、ポリスチレン系プラスチックの熱分解によって発生が危惧されるダイオキシン類の発生を低減することができる装置を提供することができる。

5 産業上の利用可能性

本発明は、プラスチック系廃棄物を過度な熱処理を伴わずに難燃剤とポリスチレン系プラスチックを極めて容易に分離して、それぞれを回収することができ、廃家電製品のリサイクルを促進することができる。

請求の範囲

1. 難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解させた後に、
5 得られた溶液を遠心分離することによりポリスチレン系プラスチックを分離回収することを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチック廃棄物の処理方法。
2. 難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解させた後に、
10 得られた溶液を遠心分離することにより難燃剤及び／又は難燃助剤を分離回収することを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法。
3. 難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解して、得ら
15 れた溶液を遠心分離することにより難燃剤及び／又は難燃助剤を含有する画分を得た後に、該画分に難燃剤及び／又は難燃助剤は溶解しないが前記溶媒は溶解し得る溶媒を添加して難燃剤及び／又は難燃助剤を析出させることにより難燃剤及び／又は難燃助剤を分離回収することを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃
20 棄物の処理方法。
4. 難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解して、得られた溶液に、該溶液の比重よりも大きく且つ難燃剤及び／又は難燃助剤の比重よりも小さい比重の溶媒を加えて遠心分離することにより、ポリ
25 スチレン系プラスチックを含有する画分を分離回収することを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法。

の処理方法。

5 5. 難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解して得られた溶液に、該溶液の比重よりも大きく且つ難燃剤及び／又は難燃助剤の
5 比重よりも小さい比重の溶媒を加えて遠心分離することにより、難燃剤及び／又は難燃助剤を含有する画分を分離回収することを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法。

10 6. 前記請求の範囲第1項又は第4項に記載の難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法において、回収されたポリスチレン系プラスチックをさらに脱ハロゲン処理することを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法。

15 7. 前記請求の範囲第1項又は第4項に記載の難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法において、回収されたポリスチレン系プラスチックを熱分解して得られた流体と、過酸化水素水とオゾンガスの混合物とを接触させて、該流体中に含まれるダイオキシン類又はダイオキシン類前駆体物質を分解することを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物
20 の処理方法。

8. 前記請求の範囲第1項又は第4項に記載の難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法において、回収されたポリスチレン系プラスチックを熱分解して得られた流体と、過酸化水素水とオゾンガスの混合物とを接触させて、該流体中に含まれるダイオキシン類又はダイオキシン類前駆体物質を分解した後、金属触媒
25 と接触させて脱ハロゲン化することを特徴とする難燃剤含有ポリスチレ

ン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法。

9. 請求の範囲第1項乃至第8項のいずれかに記載の難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法において、
5 ポリスチレン系プラスチックを溶解し得るとともにポリスチレン系プラスチック以外のプラスチックを溶媒し難い溶媒に溶解した後に、不溶解物を除去することを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法。

10 10. 前記ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒が、難燃剤及び／又は難燃助剤を溶解し難い溶媒であることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第9項のいずれかに記載の難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法。

15 11. 前記ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒の比重が、ポリスチレン系プラスチックの比重よりも大きいことを特徴とする請求の範囲第1項乃至第10項のいずれかに記載の難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法。

20 12. プラスチックと該プラスチックと比重を異にする物質が含有されたプラスチック系廃棄物の処理方法であって、該プラスチック系廃棄物を溶解し得る溶媒に溶解して、得られた溶液に該溶液の比重と該物質の比重の間の比重の溶媒を加えて遠心分離することにより、該プラスチックを含む画分を回収することを特徴とするプラスチック系廃棄物の処理方法。

25 13. プラスチックと該プラスチックと比重を異にする物質が含有されたプラスチック系廃棄物の処理方法であって、該プラスチック系廃棄物を溶解し得る溶媒に溶解して、得られた溶液に該溶液の比重と該物質の比重の間の比重の溶媒を加えて遠心分離することにより、該物質を含む

画分を回収することを特徴とするプラスチック系廃棄物の処理方法。

1 4. ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を熱分解して得られた流体と、過酸化水素水とオゾンガスの混合物とを接触させて、該流体中に含まれるダイオキシン類又はダイオキシン類前駆体物質を分解することを特徴とするポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法。

1 5. ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を熱分解して得られた流体と、過酸化水素水とオゾンガスの混合物とを接触させて、該流体中に含まれるダイオキシン類又はダイオキシン類前駆体物質を分解した後に、金属触媒と接触させて脱ハロゲン化することを特徴とするポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理方法。

1 6. 難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解させるための溶解槽（1）と、該溶解槽（1）から取り出された溶液を遠心分離するための遠心分離装置（3）と、該遠心分離装置（3）により得られたポリスチレン系プラスチックを含む画分からポリスチレン系プラスチックを回収するためのポリスチレン系プラスチック回収手段とを備えることを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置。

1 7. 難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解させるための溶解槽（1）と、該溶解槽（1）から取り出された溶液を遠心分離するための遠心分離装置（3）と、該遠心分離装置（3）により得られた難燃剤及び／又は難燃助剤を含む画分から難燃剤及び／又は難燃助剤を回収するための難燃剤回収手段とを備えることを特徴とする難燃剤含

有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置。

18. 難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解させるための溶解槽(1)と、該溶解槽(1)から取り出された溶液に該溶液の
5 比重と該難燃剤及び／又は難燃助剤の比重の間の比重の溶媒を供給する供給手段と、該溶解槽(1)から取り出された溶液と該供給手段によって供給された溶液との混合物を遠心分離するための遠心分離装置(3)と、該遠心分離装置(3)により得られたポリスチレン系プラスチックを含む画分からポリスチレン系プラスチックを回収するためのポリスチ
10 レン系プラスチック回収手段とを備えることを特徴とする難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置。

19. 難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物を、ポリスチレン系プラスチックを溶解し得る溶媒に溶解させるための溶解槽(1)と、該溶解槽(1)から取り出された溶液に該溶液の
15 比重と該難燃剤及び／又は難燃助剤の比重の間の比重の溶媒を供給する供給手段と、該溶液と該中間の比重の溶媒との混合物を遠心分離するための遠心分離装置(3)と、該遠心分離装置(3)により得られた難燃剤及び／又は難燃助剤を含む画分から難燃剤及び／又は難燃助剤を回収するための難燃剤回収手段とを備えることを特徴とする難燃剤含有ポリ
20 スチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置。

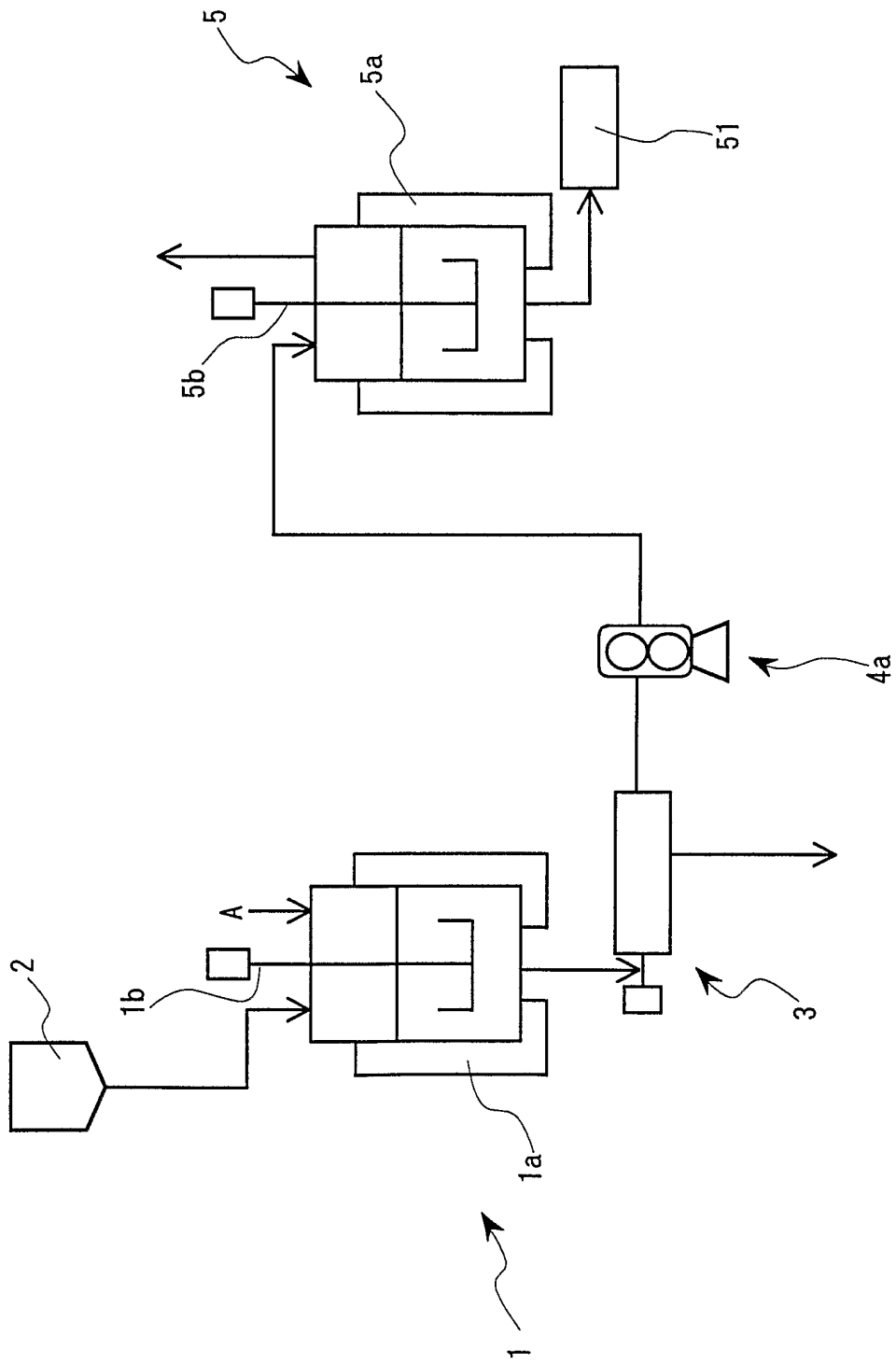
20. 前記請求の範囲第18項又は第19項に記載の難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置であって、前記遠心分離装置(3)により得られた中間の比重の溶媒を含む画分が、前記供給手段に供給されるように構成されていることを特徴とする難燃
25 剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置。

2 1. 前記溶解槽から取り出された溶液から不溶解物を除去する除去手段が設けられ、該除去手段により不溶解物が除去された溶液を前記遠心分離装置（3）に供給するように構成されていることを特徴とする請求の範囲第16項乃至第20項のいずれかに記載の難燃剤含有ポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置。

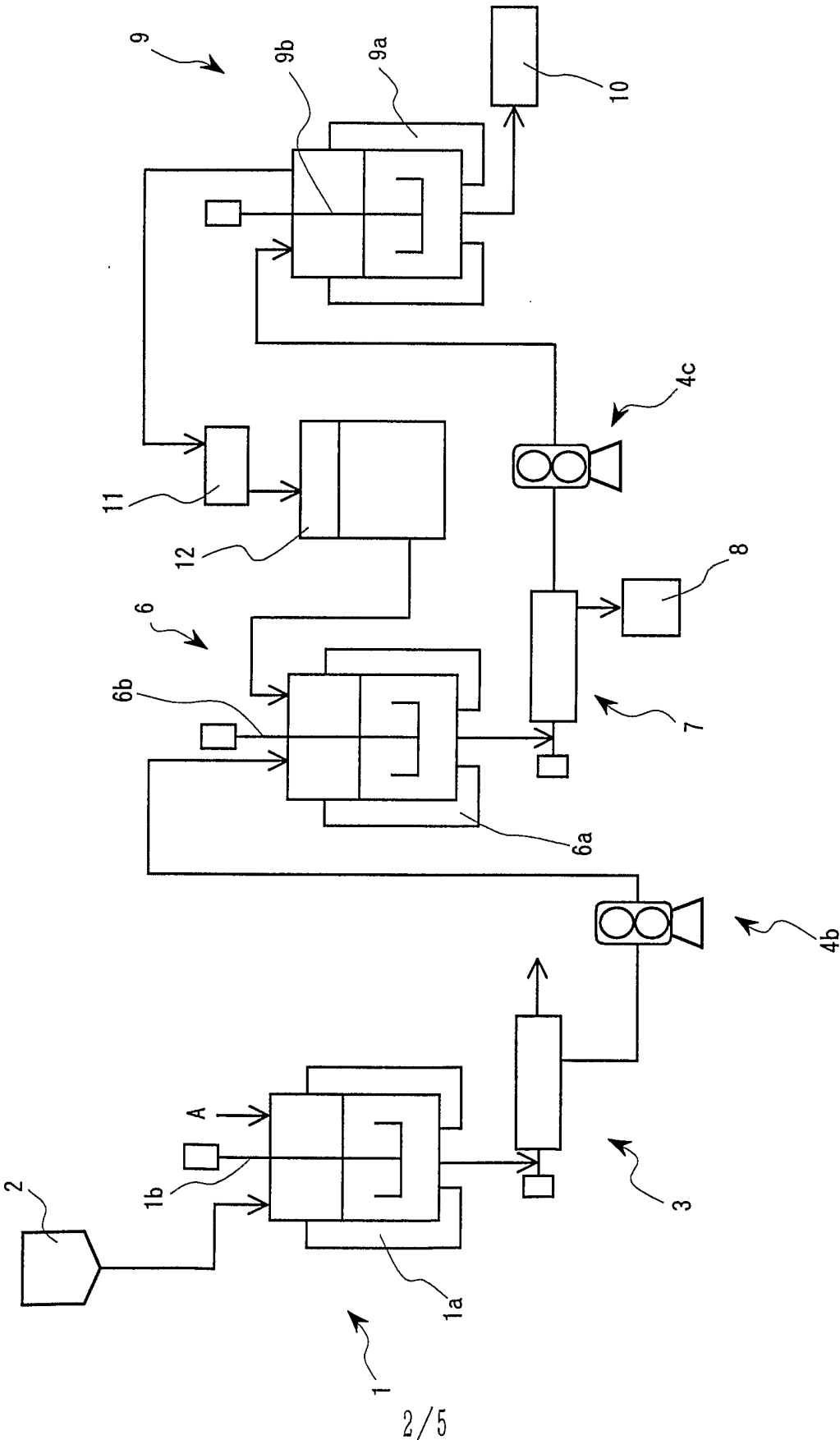
2 2. ポリスチレン系プラスチックを熱分解する熱分解装置と、オゾンガスを発生するオゾンガス発生装置（130）と、過酸化水素水を貯蔵するための過酸化水素水槽（120）と、該オゾンガス発生装置（130）により発生したオゾンガスと過酸化水素水を混合する混合手段とを備え、該熱分解装置から取り出された流体は該混合手段により混合されたオゾンガスと過酸化水素水の混合物に接触するように構成されていることを特徴とするポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置。

2 3. 前記請求の範囲第22項に記載のポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置において、該熱分解装置から取り出されてオゾンガスと過酸化水素水の混合物に接触した流体を、金属触媒に接触させて脱ハロゲン化する触媒槽（150）を備えることを特徴とするポリスチレン系プラスチックを含むプラスチック系廃棄物の処理装置。

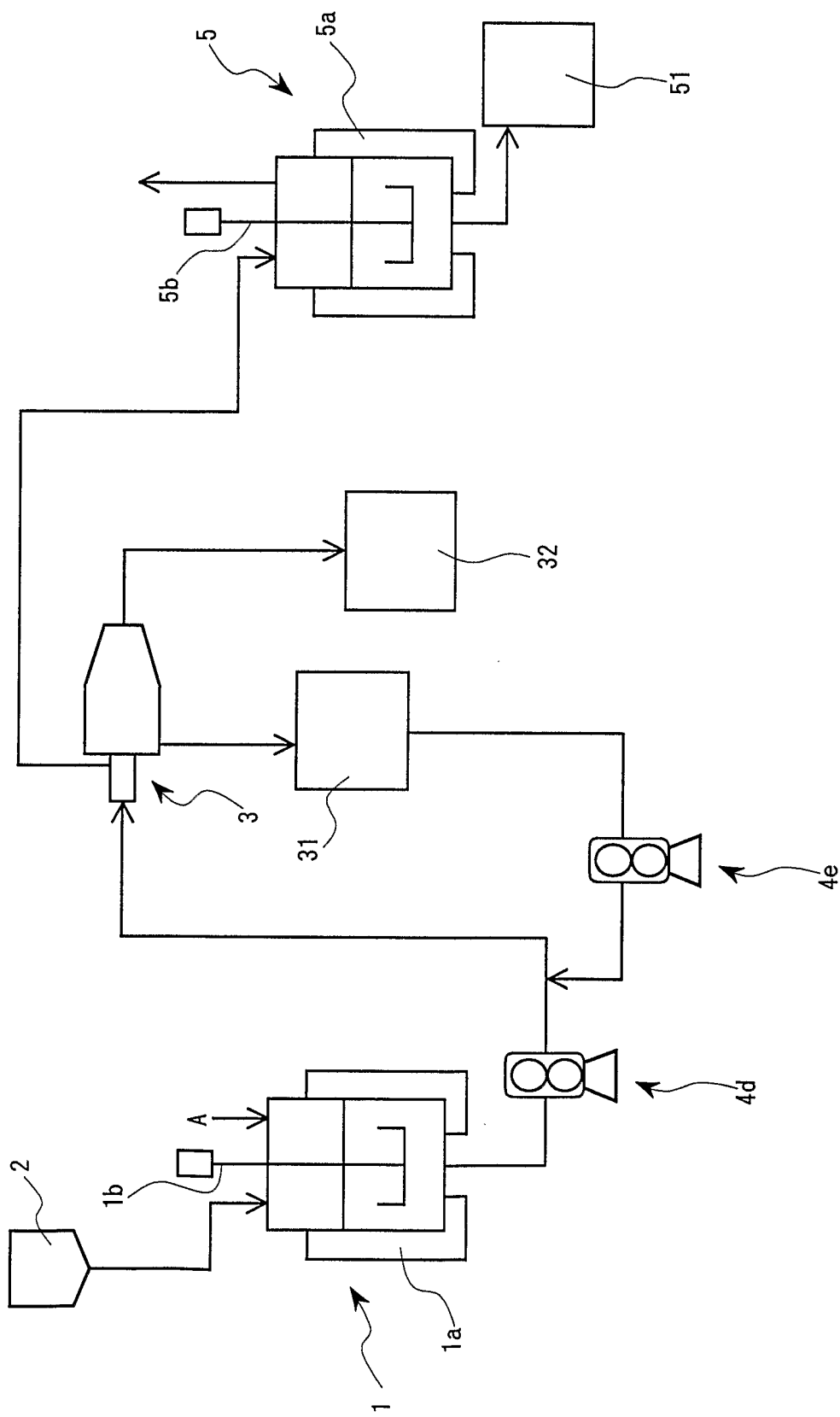
第 1 図



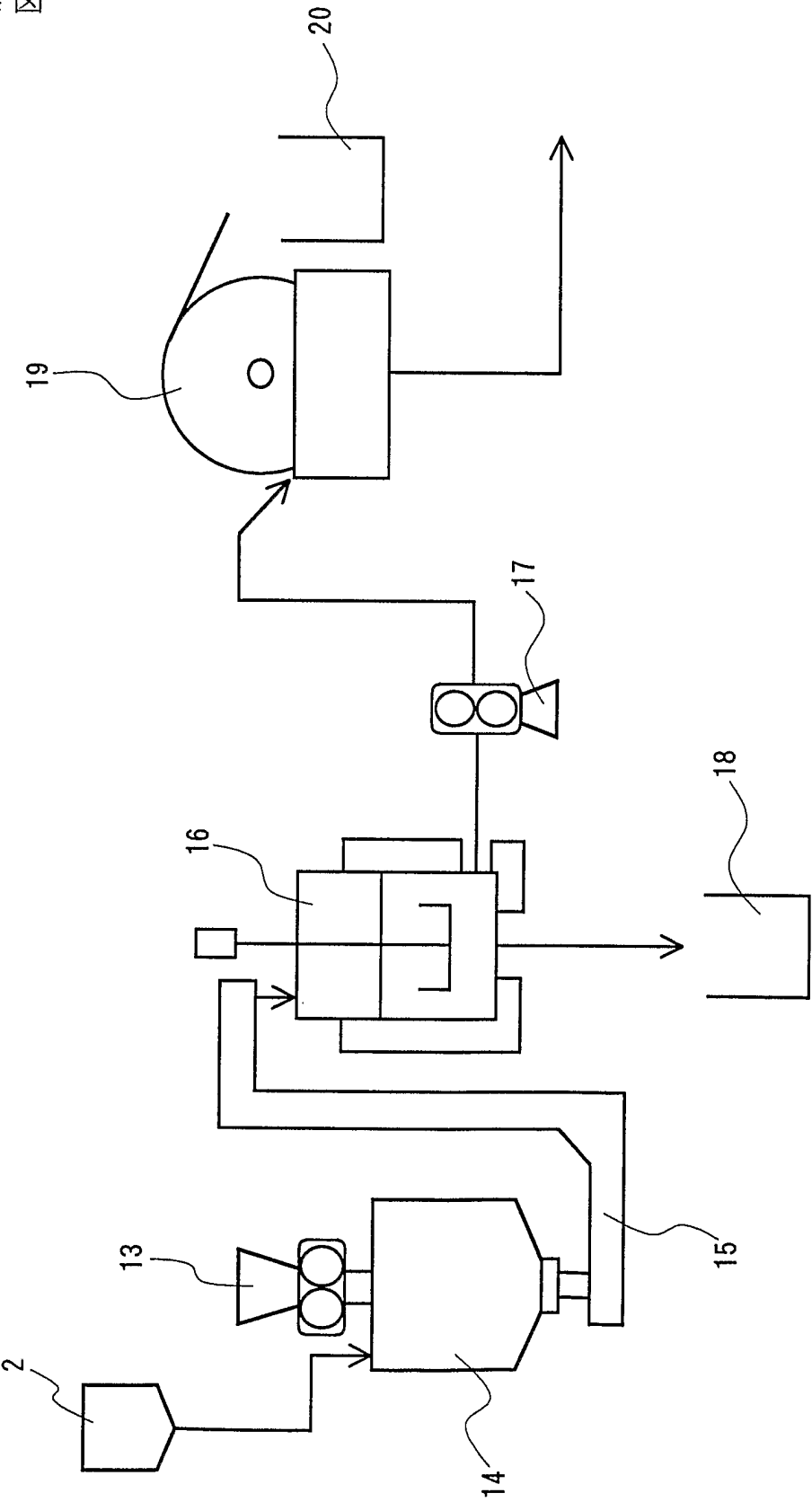
第 2 図



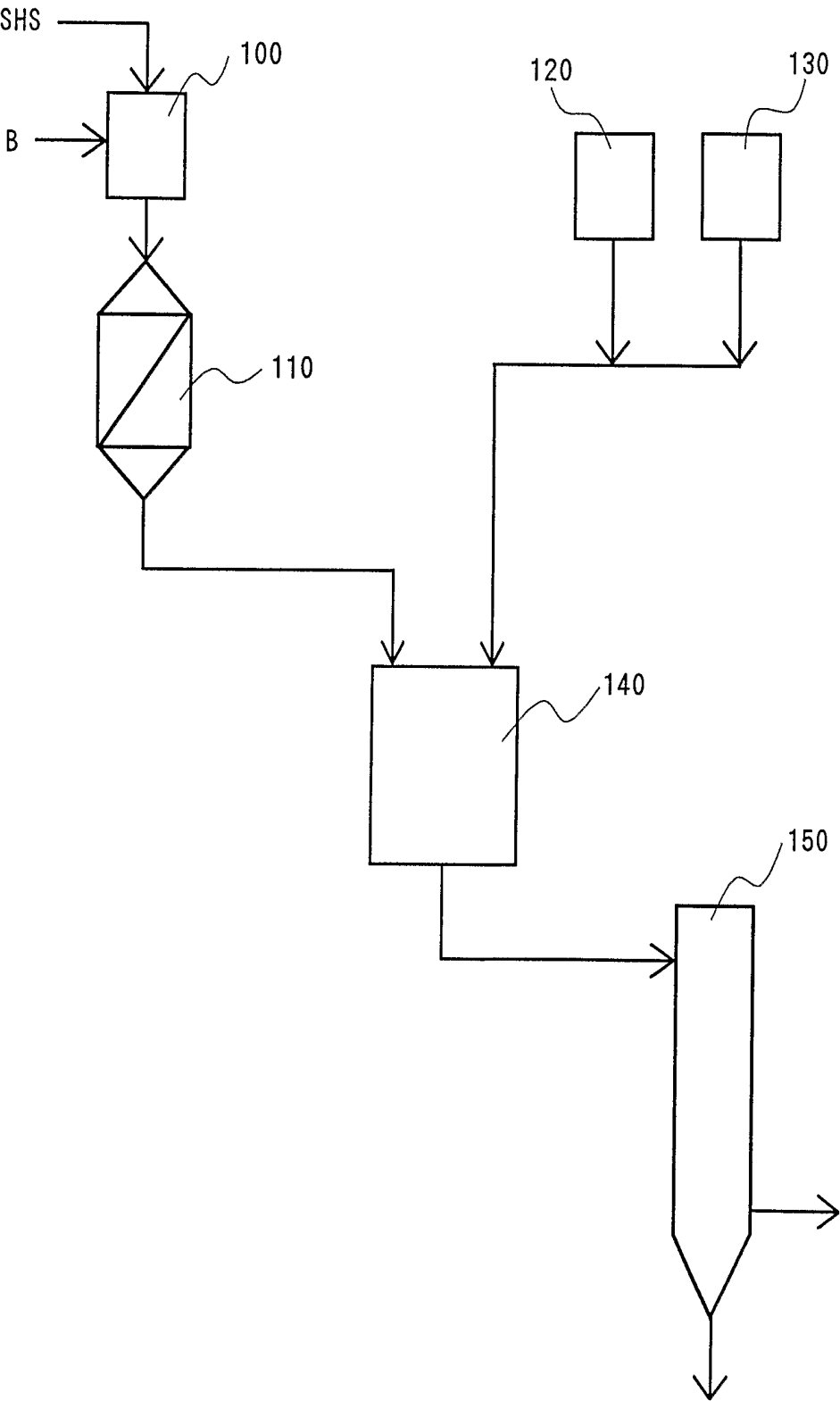
第 3 図



第 4 図



第 5 図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/07765

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ C08J11/22

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C08J11/00, B01D53/34, B01D53/36

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2002
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2002	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2002

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
WPI (DIALOG)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2001-019794 A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 23 January, 2001 (23.01.01), Claims; page 2, right column, Par. No. [0006] to page 3, left column, Par. Nos. [0009], [0011] to right column, Par. No. [0015] (Family: none)	1, 2, 9-11, 16, 17, 21 3-6, 12-15, 22, 23
X Y	EP 949293 A2 (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 13 October, 1999 (13.10.99), Full text & JP 2000-198875 A Full text & CN 1231304 A	1, 2, 6, 9-11, 16, 17, 21 3-6, 12-15, 22, 23

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ 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 document 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
17 October, 2002 (17.10.02)Date of mailing of the international search report
05 November, 2002 (05.11.02)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/07765

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 48-026675 A (Takehiko KAWAI), 07 April, 1973 (07.04.73), Claims; page 2, upper left column, line 15 to lower right column, line 8; page 3, upper left column, lines 7 to 13; upper right column, examples (Family: none)	3-5, 12, 13, 18-20
Y	JP 11-228730 A (Chiyoda Corp.), 24 August, 1999 (24.08.99), Claims; page 3, left column, Par. Nos. [0005] to [0007]; page 5, right column, Par. No. [0019] (Family: none)	6
X A	JP 11-166184 A (Chiyoda Corp.), 22 June, 1999 (22.06.99), Full text (Family: none)	14, 15, 22, 23 7, 8
A	JP 2001-072793 A (NKK Corp.), 21 March, 2001 (21.03.01), Claims; page 3, right column, Par. No. [0015] (Family: none)	11
A	JP 2000-191825 A (San Kaihatsu Kabushiki Kaisha), 11 July, 2000 (11.07.00), Claims; page 3, right column, Par. No. [0012] (Family: none)	8, 15, 23
P, X	JP 2002-194136 A (Asahi Kasei Corp.), 10 July, 2002 (10.07.02), Full text (Family: none)	1, 2, 9-11, 16, 17
P, A	JP 2001-240696 A (Kabushiki Kaisha San Esu), 04 September, 2001 (04.09.01), Claims (Family: none)	8, 15, 22, 23

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int. Cl ⁷ C08J11/22		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int. Cl ⁷ C08J11/00, B01D53/34, B01D53/36		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1926-1996 日本国公開実用新案公報 1971-2002 日本国登録実用新案公報 1994-2002 日本国実用新案登録公報 1996-2002		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) WPI (DIALOG)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 2001-019794 A (旭化成工業株式会社), 2001.01.23, 特許請求の範囲,	1, 2, 9-11, 16, 17, 21
Y	第2頁右欄【0006】-第3頁左欄【0009】, 第3頁左欄【0011】-右欄【0015】, (ファミリーなし)	3-6, 12-15, 22, 23
X	EP 949293 A2 (MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD.), 1999.10.13, 全文	1, 2, 6, 9-11, 16, 17, 21
Y	& JP 2000-198875 A, 全文 & CN 1231304 A	3-6, 12-15, 22, 23
☒ C欄の続きにも文献が列举されている。 ☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 17.10.02	国際調査報告の発送日 05.11.02	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 小久保 勝伊 電話番号 03-3581-1101 内線 6429	

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P 48-026675 A (河合 武彦) , 1973. 04. 07, 特許請求の範囲, 第2頁左上欄第15行- 右下欄第8行, 第3頁左上欄第7行-第13行, 第3頁右上欄 実施例, (ファミリーなし)	3-5, 12, 13, 18-20
Y	J P 11-228730 A (千代田化工建設株式会社) , 1999. 08. 24, 特許請求の範囲, 第3頁左欄【0005】 -【0007】, 第5頁右欄【0019】, (ファミリーなし)	6
X A	J P 11-166184 A (千代田化工建設株式会社) , 1999. 06. 22, 全文, (ファミリーなし)	14, 15, 22, 23 7, 8
A	J P 2001-072793 A (日本鋼管株式会社) , 2001. 03. 21, 特許請求の範囲, 第3頁右欄【0015】 (ファミリーなし)	11
A	J P 2000-191825 A (サン開発株式会社) , 2000. 07. 11, 特許請求の範囲, 第3頁右欄【0012】 (ファミリーなし)	8, 15, 23
PX	J P 2002-194136 A (旭化成株式会社) , 2002. 7. 10, 全文, (ファミリーなし)	1, 2, 9-11, 16, 17
PA	J P 2001-240696 A (株式会社サンエス) , 2001. 09. 04, 特許請求の範囲, (ファミリーなし)	8, 15, 22, 23