

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2025年6月5日(05.06.2025)



(10) 国際公開番号

WO 2025/115231 A1

(51) 国際特許分類:

C22B 59/00 (2006.01) C22B 7/00 (2006.01)
C22B 1/00 (2006.01) C22B 23/00 (2006.01)
C22B 3/06 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2024/000872

(22) 国際出願日: 2024年1月15日(15.01.2024)

(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 2023-201307 2023年11月29日(29.11.2023) JP

(71) 出願人: 株式会社村田製作所
(MURATA MANUFACTURING CO., LTD.) [JP/

JP]; 〒6178555 京都府長岡京市東神足 1
丁目 10 番 1 号 (JP).

(72) 発明者: 山口 健一 (YAMAGUCHI, Kenichi);
〒6178555 京都府長岡京市東神足 1 丁目 1
0 番 1 号 株式会社村田製作所内 (JP). 濱
田 大介 (HAMADA, Daisuke); 〒6178555 京都
府長岡京市東神足 1 丁目 10 番 1 号 株
式会社村田製作所内 (JP).

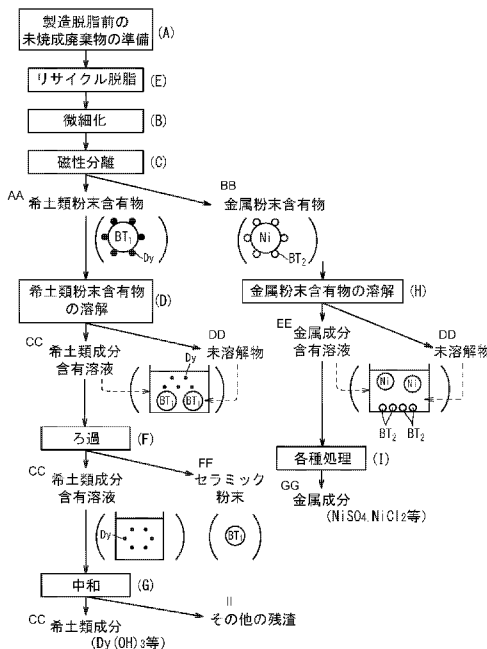
(74) 代理人: 弁理士法人岡田特許事務所 (OKADA
PATENT OFFICE, P.C.); 〒5410054 大阪府大
阪市中央区南本町 4 丁目 2 番 21 号
イヨビル 3 階 (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保
護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA,

(54) Title: METHOD FOR SEPARATING AND RECOVERING RARE EARTH CONSTITUENT AND METAL
CONSTITUENT FROM UNSINTERED WASTE BEFORE MANUFACTURING DEGREASING OR FROM UNSIN-
TERED WASTE AFTER MANUFACTURING DEGREASING

(54) 発明の名称: 製造脱脂前の未焼成廃棄物又は製造脱脂後の未焼成廃棄物からの
希土類成分及び金属成分の分離回収方法

図 1



- (A) Preparation of unsintered waste before manufacturing degreasing
(B) Refinement
(C) Magnetic separation
(D) Dissolution of substance containing rare earth powder
(E) Recycling degreasing
(F) Filtering
(G) Neutralization
(H) Dissolution of substance containing metal powder
(I) Various processing
AA Substance containing rare earth powder
BB Substance containing metal powder
CC Solution containing rare earth constituent
DD Undissolved substances
EE Solution containing metal constituent
FF Ceramic powder
GG Metal constituent (NiSO₄, NiCl₂, etc.)
HH Rare earth constituent (Dy(OH)₃, etc.)
II Other residue

(57) Abstract: Provided is a method for separating and recovering a rare earth constituent and a metal constituent from unsintered waste. This separation and recovery method comprises: (A) a step in which unsintered waste before manufacturing degreasing is prepared, said waste including a magnetic metal powder, a ceramic powder, a rare earth powder, and

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, MG, MK, MN, MU, 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) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, 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).

添付公開書類:

一 国際調査報告(条約第21条(3))

a resin constituent, and the metal powder and the ceramic powder adhering at least partially to one another; (B) a step in which the unsintered waste before manufacturing degreasing and a solvent are mixed and refined within a resulting slurry; (C) a step in which, after the step (B), a substance that contains the metal powder and a substance that contains the rare earth powder are separated and recovered using a magnet; (D) a step in which, by dissolving the substance containing the rare earth powder in a mineral acid, the ceramic powder is made to precipitate, and a solution containing a rare earth constituent, in which the rare earth powder is dissolved, is produced; and (H) a step in which, by dissolving the substance containing the metal powder in a mineral acid, the ceramic powder is made to precipitate, and a solution containing a metal constituent, in which the metal powder is dissolved, is produced.

- (57) 要約: 未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法を提供する。分離回収方法は、
(A) 磁性を有する金属粉末と、セラミック粉末と、希土類粉末と、樹脂成分と、を含み、金属粉末とセラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている製造脱脂前の未焼成廃棄物を準備する工程と、
(B) 製造脱脂前の未焼成廃棄物と溶媒とを混合して生成したスラリーの中で微細化する工程と、(C) 工程(B)を経た後、磁石を用いて、金属粉末含有物と、希土類粉末含有物と、に分離して回収する工程と、(D) 希土類粉末含有物を鉱酸に溶解することにより、セラミック粉末を沈殿させるとともに希土類粉末が溶解した希土類成分含有溶液を生成する工程と、(H) 金属粉末含有物を鉱酸に溶解することにより、セラミック粉末を沈殿させるとともに金属粉末が溶解した金属成分含有溶液を生成する工程と、を備える。

明 細 書

発明の名称：

製造脱脂前の未焼成廃棄物又は製造脱脂後の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法

技術分野

[0001] この発明は、積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される製造脱脂前の未焼成廃棄物又は製造脱脂後の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法に関する。

背景技術

[0002] 自動車に搭載される電子部品、携帯電話の電子部品等として積層セラミックコンデンサ（MLCC：MultiLayer Ceramic Capacitor）の大幅な需要が見込まれている。積層セラミックコンデンサは、内部電極層及びセラミック層を有する積層体と、外部電極と、を含む。内部電極層には例えばNi等の金属成分が含まれており、セラミック層は例えばBaTiO₃等から形成されている。特許文献1～4には、内部電極層に主として用いられているNiを回収する方法が開示されているとともに、Niを回収する過程でセラミック層に含まれるBaTiO₃を分離していることが開示されている。

先行技術文献

特許文献

- [0003] 特許文献1：特開2003-253347号公報
特許文献2：特開2003-268459号公報
特許文献3：特開2003-277843号公報
特許文献4：特開2003-277846号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] ここで、積層セラミックコンデンサを製造するために用いられる原料には

、Niだけでなく、希土類成分も含まれているものがある。特許文献1～4では、Niを回収することは開示されているものの、希土類成分の回収についてまでは開示されていない。しかし、Ni等の金属成分だけでなく、希土類成分も回収できることが望ましい。

[0005] それゆえに、この発明の主たる目的は、積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される製造脱脂前の未焼成廃棄物又は製造脱脂後の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法を提供することである。

課題を解決するための手段

[0006] この発明にかかる製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法は、

(A) 積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成前であり製造脱脂前の未焼成廃棄物であって、磁性を有する金属粉末と、セラミック粉末と、希土類粉末と、樹脂成分と、を含み、金属粉末とセラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている製造脱脂前の未焼成廃棄物を準備する工程と、

(B) 製造脱脂前の未焼成廃棄物を、製造脱脂前の未焼成廃棄物と溶媒とを混合して生成したスラリーの中で微細化する工程と、

(C) 工程(B)を経た後の製造脱脂前の未焼成廃棄物を、磁石を用いて、金属粉末及びセラミック粉末を含む金属粉末含有物と、希土類粉末及びセラミック粉末を含む希土類粉末含有物と、に分離して回収する工程と、

(D) 工程(C)を経た後の希土類粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも1種の鉱酸に溶解することにより、希土類粉末含有物中のセラミック粉末を沈殿させるとともに希土類粉末含有物中の希土類粉末が希土類成分として溶解した希土類成分含有溶液を生成する工程と、

(H) 工程(C)を経た後の金属粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも1種の鉱酸に溶解することにより、金属粉末含有物中のセラミック粉末を沈殿させるとともに金属粉末含有物中の金属粉末が

金属成分として溶解した金属成分含有溶液を生成する工程と、を備える。

[0007] この発明によれば、製造脱脂前の未焼成廃棄物から、希土類成分及び金属成分を分離回収することができる。

[0008] この発明にかかる製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法は、

(A) 積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成前であり製造脱脂前の未焼成廃棄物であって、磁性を有する金属粉末と、セラミック粉末と、希土類粉末と、樹脂成分と、を含み、金属粉末とセラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている製造脱脂前の未焼成廃棄物を準備する工程と、

(B) 製造脱脂前の未焼成廃棄物を微細化したものを溶媒と混合してスラリーを生成する工程と、

(C) 工程 (B) を経た後の製造脱脂前の未焼成廃棄物を、磁石を用いて、金属粉末及びセラミック粉末を含む金属粉末含有物と、希土類粉末及びセラミック粉末を含む希土類粉末含有物と、に分離して回収する工程と、

(D) 工程 (C) を経た後の希土類粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも 1 種の鉱酸に溶解することにより、希土類粉末含有物中のセラミック粉末を沈殿させるとともに希土類粉末含有物中の希土類粉末が希土類成分として溶解した希土類成分含有溶液を生成する工程と、

(H) 工程 (C) を経た後の金属粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも 1 種の鉱酸に溶解することにより、金属粉末含有物中のセラミック粉末を沈殿させるとともに金属粉末含有物中の金属粉末が金属成分として溶解した金属成分含有溶液を生成する工程と、を備える。

[0009] この発明によれば、製造脱脂前の未焼成廃棄物から、希土類成分及び金属成分を分離回収することができる。

[0010] この発明にかかる製造脱脂後の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法は、

(A) 積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成前

あり製造脱脂後の未焼成廃棄物であって、磁性を有する金属粉末と、セラミック粉末と、希土類粉末と、を含み、金属粉末とセラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っており、製造工程において樹脂成分が脱脂されている製造脱脂後の未焼成廃棄物を準備する工程と、

(B) 製造脱脂後の未焼成廃棄物を、製造脱脂後の未焼成廃棄物と溶媒とを混合して生成したスラリーの中で微細化する工程と、

(C) 工程 (B) を経た後の製造脱脂後の未焼成廃棄物を、磁石を用いて、金属粉末及びセラミック粉末を含む金属粉末含有物と、希土類粉末及びセラミック粉末を含む希土類粉末含有物と、に分離して回収する工程と、

(D) 工程 (C) を経た後の希土類粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも 1 種の鉱酸に溶解することにより、希土類粉末含有物中のセラミック粉末を沈殿させるとともに希土類粉末含有物中の希土類粉末が希土類成分として溶解した希土類成分含有溶液を生成する工程と、

(H) 工程 (C) を経た後の金属粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも 1 種の鉱酸に溶解することにより、金属粉末含有物中のセラミック粉末を沈殿させるとともに金属粉末含有物中の金属粉末が金属成分として溶解した金属成分含有溶液を生成する工程と、を備える。

[0011] この発明によれば、製造脱脂後の未焼成廃棄物から、希土類成分及び金属成分を分離回収することができる。

[0012] この発明にかかる製造脱脂後の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法は、

(A) 積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成前であり製造脱脂後の未焼成廃棄物であって、磁性を有する金属粉末と、セラミック粉末と、希土類粉末と、を含み、金属粉末とセラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っており、製造工程において樹脂成分が脱脂されている製造脱脂後の未焼成廃棄物を準備する工程と、

(B) 製造脱脂後の未焼成廃棄物を微細化したものを溶媒と混合してスラリーを生成する工程と、

(C) 工程 (B) を経た後の製造脱脂後の未焼成廃棄物を、磁石を用いて、金属粉末及びセラミック粉末を含む金属粉末含有物と、希土類粉末及びセラミック粉末を含む希土類粉末含有物と、に分離して回収する工程と、

(D) 工程 (C) を経た後の希土類粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも 1 種の鉱酸に溶解することにより、希土類粉末含有物中のセラミック粉末を沈殿させるとともに希土類粉末含有物中の希土類粉末が希土類成分として溶解した希土類成分含有溶液を生成する工程と、

(H) 工程 (C) を経た後の金属粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも 1 種の鉱酸に溶解することにより、金属粉末含有物中のセラミック粉末を沈殿させるとともに金属粉末含有物中の金属粉末が金属成分として溶解した金属成分含有溶液を生成する工程と、

を備える。

[0013] この発明によれば、製造脱脂後の未焼成廃棄物から、希土類成分及び金属成分を分離回収することができる。

発明の効果

[0014] この発明によれば、積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される製造脱脂前の未焼成廃棄物又は製造脱脂後の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法を提供することができる。

[0015] この発明の上述の目的、その他の目的、特徴及び利点は、図面を参照して行う以下の発明を実施するための形態の説明から一層明らかとなろう。

図面の簡単な説明

[0016] [図1]この発明の第1の実施の形態に係る、積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成（積層チップの焼成）前であり製造脱脂前の未焼成廃棄物から希土類成分及び金属成分を分離回収する分離回収方法を示すフロー図である。

〔図2〕この発明の第1の実施の形態に係る積層セラミックコンデンサの一例を示す外観斜視図である。

〔図3〕図2の線ⅠⅠⅠ－ⅠⅠⅠにおける断面図である。

[図4]積層チップにおける、長さ方向及び積層方向を含む面に平行な断面図である。

[図5]図4の α 部分の拡大図であり、各種粉末の状態を示す模式図である。

[図6]この発明の第2の実施の形態に係る、積層セラミックコンデンサの製造工程において排出されるとともに、前記製造工程において製造脱脂された焼成（積層チップの焼成）前の製造脱脂後の未焼成廃棄物から希土類成分及び金属成分を分離回収する分離回収方法を示すフロー図である。

発明を実施するための形態

[0017] <第1の実施の形態>

1. 分離回収方法

この発明の第1の実施の形態にかかる、積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成（積層チップの焼成）前であり製造脱脂前の未焼成廃棄物から希土類成分及び金属成分の分離回収方法について説明する。

[0018] 図1は、この発明の第1の実施の形態に係る、積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成（積層チップの焼成）前であり製造脱脂前の未焼成廃棄物から希土類成分及び金属成分を分離回収する分離回収方法を示すフロー図である。この発明の第1の実施の形態に係る分離回収方法では、分離回収の出発点として積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成（積層チップの焼成）前であり製造脱脂前の未焼成廃棄物を用いる。製造脱脂前の未焼成廃棄物について説明する。

[0019] （1）製造脱脂前の未焼成廃棄物

製造脱脂前の未焼成廃棄物を説明する前に、まず積層セラミックコンデンサの製造工程により製造される積層セラミックコンデンサ及びその製造工程について以下に説明する。

[0020] （1-1）積層セラミックコンデンサ

図2は、この発明の第1の実施の形態に係る積層セラミックコンデンサの一例を示す外観斜視図である。図3は、図2の線ⅠⅠⅠ-ⅠⅠⅠにおける断面図である。ここでは、積層セラミックコンデンサ10の一例として2端子

型積層セラミックコンデンサを例に挙げて説明する。

- [0021] 図2、図3に示すように、積層セラミックコンデンサ10は、例えば直方体状の積層体12と、積層体12の両端部に配置される外部電極30と、を含む。
- [0022] 積層体12は、積層された複数のセラミック層14と、セラミック層14上に積層された複数の内部電極層16とを有する。さらに、積層体12は、高さ方向（積層方向）xに相対する第1の主面12a及び第2の主面12bと、高さ方向xに直交する幅方向yに相対する第1の側面12c及び第2の側面12dと、高さ方向x及び幅方向yに直交する長さ方向zに相対する第1の端面12e及び第2の端面12fとを有する。セラミック層14と内部電極層16は、高さ方向xに積層される。
- [0023] 第1の内部電極層16a及び第2の内部電極層16bは、たとえば、磁性を有する金属を含む導電材料から構成することができ、磁性を有する金属は単体金属でも合金でもよい。磁性を有する金属としては、例えばNi及びFeを挙げることができる。
- [0024] セラミック層14は、たとえば、セラミック材料として、誘電体材料により形成することができる。このような誘電体材料としては、たとえば、BaTiO₃、CaTiO₃、SrTiO₃、又はCaZrO₃などの成分を含むペロブスカイト型化合物を主成分とし、ペロブスカイト構造を備える誘電体セラミックを用いることができる。上記の誘電体材料を主成分として含む場合、所望する積層体12の特性に応じて、希土類成分が添加剤として誘電体材料に添加されている。添加される希土類成分としては、例えば、Dy、Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Ho、Er、Tm、Yb、Luのうち少なくとも1種を挙げることができる。また、上記の誘電体材料には、たとえば、Mn化合物、Fe化合物、Cr化合物、Co化合物、Ni化合物などの、主成分よりも含有量の少ない副成分を添加したものをを用いてもよい。また、上記の主成分に、Si、Mg及びBa、Mnのうちの少なくとも一種がさらなる添加剤として加えられてもよい。ただし

、これらの副成分及び添加剤が希土類成分の分離回収において希土類成分の品質低下を引き起こす可能性があるため、これらの副成分及び添加剤は省略されてもよい。

[0025] 積層体 1 2 の第 1 の端面 1 2 e 側及び第 2 の端面 1 2 f 側には、図 2、図 3 に示されるように、外部電極 3 0 が配置される。

[0026] 外部電極 3 0 は、第 1 の外部電極 3 0 a 及び第 2 の外部電極 3 0 b を有する。第 1 の外部電極 3 0 a は、第 1 の内部電極層 1 6 a に接続され、少なくとも第 1 の端面 1 2 e の表面に配置されている。第 2 の外部電極 3 0 b は、第 2 の内部電極層 1 6 b に接続され、少なくとも第 2 の端面 1 2 f の表面に配置されている。

[0027] 外部電極 3 0 は、金属成分を含む下地電極層 3 2 と、下地電極層 3 2 上に配置されるめっき層 3 4 とを含む。第 1 の外部電極 3 0 a は、第 1 の下地電極層 3 2 a と、第 1 のめっき層 3 4 a とを含む。第 2 の外部電極 3 0 b は、第 2 の下地電極層 3 2 b と、第 2 のめっき層 3 4 b とを含む。

[0028] 下地電極層 3 2 は、ガラス成分と金属成分とを含む焼付け層から形成されてもよい。焼付け層の金属成分としては、例えば、Cu、Ni、Ag、Pd、Ag-Pd 合金、Au 等から選ばれる少なくとも 1 つを含む。焼付け層のガラス成分としては、例えば B、Si、Ba、Mg、Al、Li 等から選ばれる少なくとも 1 つの元素を含む酸化物を含む。また、下地電極層 3 2 は、熱硬化性樹脂及び金属成分を含む導電性樹脂層から形成されてもよい。導電性樹脂層に含まれる金属としては、例えば、Ag、Cu、Ni、Sn、Bi 又は、それらを含む合金を使用することができる。熱硬化性樹脂としては、エポキシ樹脂、フェノキシ樹脂などの公知の種々の熱硬化性樹脂を使用することができる。

[0029] めっき層 3 4 としては、例えば、Cu、Ni、Sn、Ag、Pd、Ag-Pd 合金、Au 等から選ばれる少なくとも 1 つを含む。

[0030] (1-2) 積層セラミックコンデンサの製造方法

次に、積層セラミックコンデンサ 1 0 の製造方法について説明する。

- [0031] (工程1) まず、セラミック層用の誘電体シート及び内部電極層用の導電性ペーストが準備される。セラミック層用の誘電体シートは、これに限定されないが、例えばBaTiO₃を主成分としており、添加剤としてDyが添加された誘電体スラリーから形成されている。内部電極層用の導電性ペーストは、これに限定されないが、例えばNiを主成分として形成されている。誘電体シート及び内部電極層用の導電性ペーストは、バインダ及び溶剤を含む。バインダ及び溶剤は、樹脂成分を含んで構成されるものであり、樹脂成分としては、例えば、エポキシ樹脂、フェノキシ樹脂、フェノール樹脂、ウレタン樹脂、ポリイミド樹脂などの公知の種々の熱硬化性樹脂を使用することができる。なお、Si等の無機元素は脱脂（製造脱脂、リサイクル脱脂等の脱脂を含む）によっても除去することが困難であり、この無機元素がコンタミとして製造脱脂前の未焼成廃棄物中に残存することにより希土類成分及び金属成分の分離回収に悪影響を与える。よって、樹脂成分としては、Si等の無機元素のような脱脂（製造脱脂、リサイクル脱脂等の脱脂を含む）において除去することが困難なものを含まないことが好ましい。
- [0032] (工程2) そして、誘電体シート上に、内部電極層用の導電性ペーストが、たとえば、スクリーン印刷やグラビア印刷などにより所定のパターンで印刷される。これにより、第1の内部電極層のパターンが形成された誘電体シート、及び第2の内部電極層のパターンが形成された誘電体シートが準備される。
- [0033] また、誘電体シートに関しては、内部電極層のパターンが印刷されていない外層用の誘電体シートも準備される。
- [0034] 内部電極層のパターンが印刷されていない外層用の誘電体シートが所定枚数積層される。その上に、第1の内部電極層のパターンが印刷された誘電体シート、及び第2の内部電極層のパターンが印刷された誘電体シートが順次積層されることにより内層部となる部分が形成される。この内層部となる部分の上に、内部電極層のパターンが印刷されていない外層用の誘電体シートが所定枚数積層される。これにより、内層部及び外層部を有する積層シートが

形成される。なお、誘電体シートは未焼成時のセラミック層、つまり積層チップの焼成を経る前のセラミック層という場合がある。内部電極層のパターンは、未焼成時の内部電極層、つまり積層チップの焼成を経る前の内部電極層という場合がある。

[0035] (工程3) 次に、積層シートが静水圧プレスなどの手段により積層方向にプレスされることにより、積層ブロックが作製される。

[0036] (工程4) そして、積層ブロックが所定のサイズにカットされることにより、積層チップ12__Uが切り出される。図4は、積層チップにおける、長さ方向及び積層方向を含む面に平行な断面図である。図5は、図4の α 部分の拡大図であり、各種粉末の状態を示す模式図である。図4では、外部電極30がまだ形成されていない積層チップ12__Uの断面図が示されている。また、図4、図5の積層チップ12__Uは、工程5の製造脱脂及び工程6の積層チップの焼成を経る前の状態である。ただし、積層チップ12__Uに含まれる樹脂成分については図示を省略している。図4、図5に示すように、未焼成時の内部電極層16__Uと未焼成時のセラミック層14__Uとが交互に積層されることにより、積層チップ12__Uが形成されている。

[0037] (工程5)

次に、積層チップ12__U中の樹脂成分を除去する。以下、工程5での樹脂成分の除去は製造工程上の脱脂であり、製造脱脂という場合がある。製造脱脂における脱脂温度は、例えば、800℃より高く1000℃以下である。

[0038] (工程6) 次に、積層チップ12__Uが焼成されることにより、積層体12が作製される。積層チップ12__Uの焼成温度は、誘電体であるセラミック層や内部電極層の材料にもよるが、例えば、1000℃より高く1400℃以下であることが好ましい。工程1～工程6が積層体形成工程である。なお、工程6における焼成を以下、積層チップの焼成という場合がある。また、この焼成により、未焼成時の内部電極層16__U及び未焼成時のセラミック層14__Uが焼成され、内部電極層16及びセラミック層14となる。

- [0039] (工程7) 次に、下地電極層用ペーストが積層体12の第1、第2の端面12e、12fに塗布されて焼成されることにより、外部電極30のうち下地電極層32が形成される。焼成温度は、700℃以上900℃以下であることが好ましい。
- [0040] (工程8) 次に、下地電極層32上にめっき層34を形成する。めっき層34は、例えば、下地電極層32上にNiめっき層及びSnめっき層が順に積層されて形成される。
- [0041] 上述の製造工程により、積層セラミックコンデンサ10が製造される。
- [0042] ここで、製造脱脂前の未焼成廃棄物は、上記の積層セラミックコンデンサ10の製造方法により積層セラミックコンデンサ10が製造される場合には、上記の積層セラミックコンデンサ10の製造方法のうち(工程5)において製造脱脂がまだされていない廃棄物であるとともに、(工程6)において積層チップの焼成が行われる前の廃棄物である。つまり、製造脱脂前の未焼成廃棄物は、(工程5)及び(工程6)を経る前の廃棄物である。例えば、製造脱脂前の未焼成廃棄物は、(工程4)において積層ブロックがカットされた後に排出される、積層ブロックの端切れなどの余分な積層ブロックである。また、例えば、製造脱脂前の未焼成廃棄物は、(工程4)においてカットされた後の積層チップの不良品である。また、例えば、製造脱脂前の未焼成廃棄物は、(工程2)において準備された内部電極層のパターンが形成された誘電体シートである。なお、誘電体シートにおいてPETフィルムは除去されていることが好ましい。また、製造脱脂前の未焼成廃棄物は、(工程3)において各誘電体シートの積層がずれた状態である等の積層ブロックの不良品である。また、製造脱脂前の未焼成廃棄物は、(工程1)で準備された誘電体スラリー、内部電極層用の導電性ペーストの未使用分等である。製造脱脂前の未焼成廃棄物は、(工程1)及び(工程2)において準備された内部電極層のパターンが印刷されていない誘電体シートである。なお、誘電体シートにおいてPETフィルムは除去されていることが好ましい。また、製造脱脂前の未焼成廃棄物は、(工程1)の誘電体スラリー、内部電極層用

の導電性ペーストに含まれる金属粉末、セラミック粉末、希土類粉末、樹脂成分等のそれぞれ、あるいは、これらのうち少なくとも一部が混在したものにおける未使用分等である。

[0043] (2) 分離回収方法のフロー

図1を参照してこの発明の第1の実施の形態に係る分離回収方法のフローについて説明する。図1の分離回収方法は、共通の分離回収ルートと、希土類成分の分離回収ルートと、金属成分の分離回収ルートと、を含む。希土類成分の分離回収ルート及び金属成分の分離回収ルートそれぞれは、共通の分離回収ルートから分岐する。

[0044] 共通の分離回収ルートは、例えば、工程(A)の製造脱脂前の未焼成廃棄物の準備と、工程(E)のリサイクル脱脂と、工程(B)の微細化と、工程(C)の磁性分離と、を含む。工程(C)の磁性分離の後、希土類成分の分離回収ルートと金属成分の分離回収ルートとに分岐する。希土類成分の分離回収ルートは、例えば、工程(D)の希土類粉末含有物の溶解を含み、さらに工程(F)のろ過と、工程(G)の中和と、を含むことができる。また、金属成分の分離回収ルートは、例えば、工程(H)の金属粉末含有物の溶解を含み、さらに工程(I)の各種処理を含むことができる。

[0045] (工程(A)：製造脱脂前の未焼成廃棄物の準備)

工程(A)では、積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成(積層チップの焼成)前であり製造脱脂前の未焼成廃棄物を準備する。製造脱脂前の未焼成廃棄物は前述した通りである。製造脱脂前の未焼成廃棄物は、金属粉末と、セラミック粉末と、希土類粉末と、樹脂成分と、を含む。金属粉末は主として未焼成時の内部電極層16__Uを構成している。セラミック粉末は主として未焼成時のセラミック層14__Uを構成している。

[0046] 金属粉末は、例えば金属原子の集合体である。金属粉末としては、前述の通り、磁性を有する金属を含む導電材料から構成することができ、磁性を有する金属は単体金属でも合金でもよい。磁性を有する金属としては、例えばNi及びFeを挙げることができる。これには限定されないが、例えば所定

の原料を用いてCVD (chemical vapor deposition) 法、PVD (physical vapor deposition) 法、アトマイズ法、化学還元法等により金属粉末を製造することができる。そして、金属粉末の各種製造方法において製造条件を調整すること等により所望の粒径を有する金属粉末を得ることができる。また、特許第4280184号公報には、CVD法による金属粉末としてのNiの製造方法が開示されている。特許第4280184号公報によると、塩化ニッケル等の金属塩化物を加熱蒸発させて金属塩化物ガスを発生させ、次に金属塩化物ガスと還元ガスとを接触させて気相化学反応を起こさせることにより、平均粒径が5 μ m程度の微粒子ニッケル粉末を製造している。

[0047] セラミック粉末は、誘電体材料の集合体である。誘電体材料としては、前述の通りBaTiO₃、CaTiO₃、SrTiO₃、又はCaZrO₃などを挙げることができる。これには限定されないが、固相法、ゾルーゲル法、水熱法等によりセラミック粉末を製造することができる。そして、セラミック粉末の各種製造方法において製造条件を調整すること等により所望の粒径を有するセラミック粉末を得ることができる。また、特開2023-146779号公報によれば、セラミック粉末の一例であるBaTiO₃は、一般的に、二酸化チタンなどのチタン原料と炭酸バリウムなどのバリウム原料とを反応させて合成することで得ることができる。

[0048] 希土類粉末は、希土類原子の集合体である。希土類原子は、前述の通り、Dy、Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Ho、Er、Tm、Yb、Luのうち少なくとも1種を挙げることができる。これには限定されないが、例えば噴霧熱分解、CVD法、均一沈殿法、ゾルゲル法、逆ミセル法、水熱合成法等により希土類粉末を製造することができる。そして、希土類粉末の各種製造方法において製造条件を調整すること等により所望の粒径を有する希土類粉末を得ることができる。また、特許第5987778号公報に開示されている希土類の製造方法等によっても希土類粉末を製造可能である。

[0049] セラミック粉末は、第1のセラミック粉末と、第2のセラミック粉末と、

を含む。第2のセラミック粉末は第1のセラミック粉末よりも粒径が小さい。また、第1のセラミック粉末は、未焼成時のセラミック層14__Uを主として構成している。以下、単にセラミック粉末と言う場合は、第1のセラミック粉末及び第2のセラミック粉末の少なくともいずれかを言うものとする。第1のセラミック粉末としては、例えば、比表面積が $1\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以下の中から選定されうるものである。第2のセラミック粉末としては、例えば、比表面積が $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $100\text{ m}^2/\text{g}$ 以下の中から選定されうるものである。金属粉末としては、例えば、比表面積が $1\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以下の中から選定されうるものである。そして、第2のセラミック粉末は、金属粉末の共材としての機能を果たすものであるので、金属粉末よりも粒径が小さくなる。よって、比表面積の関係は、第2のセラミック粉末>金属粉末となるように選定される。

[0050] 製造脱脂前の未焼成廃棄物において、金属粉末とセラミック粉末が少なくとも部分的に互いに付着し合っている。本実施の形態では、製造脱脂前の未焼成廃棄物において、金属粉末、第1のセラミック粉末、第2のセラミック粉末及び希土類粉末が少なくとも部分的に互いに付着し合っている。そして、本実施の形態においては、主として、金属粉末と第2のセラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っており、希土類粉末と第1のセラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている。

[0051] なお、金属粉末、セラミック粉末及び希土類粉末の付着の態様としては、例えば以下の態様を挙げることができる。例えば、金属粉末とセラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている場合、セラミック粉末と希土類粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている場合、金属粉末と希土類粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている場合、金属粉末とセラミック粉末と希土類粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている場合等が挙げられる。ここで、付着しているとは、金属粉末、セラミック粉末及び希土類粉末等の粉末どうしが化学的に結合していないことを主として意味する。ただし、付着しているの意味には、金属粉末、セラミック

粉末及び希土類粉末等の粉末どうしの一部が化学的に結合していることが含まれていてもよい。なお、化学的な結合とは、イオン結合、共有結合、金属結合など、複数の原子どうしが正の電荷及び負の電荷により互いに引き付けられて結びついている結合である。

[0052] なお、製造脱脂前の未焼成廃棄物において、このように粉末どうしが基本的には化学的に結合しておらず互いに付着した状態であるのは、製造脱脂前の未焼成廃棄物が工程5の脱脂温度（800℃より高く1000℃以下）で脱脂されておらず、さらに、工程6において積層チップが焼成（1000℃より高く1400℃以下）されていないからである。特に、工程6の焼成温度（1000℃より高く1400℃以下）による焼成では粉末どうしが化学的に結合し得るが、製造脱脂前の未焼成廃棄物はこの工程6を経ていないため、粉末どうしが基本的には化学的に結合しておらず互いに付着した状態である。

[0053] また、少なくとも部分的に互いに付着し合っているとは、例えば、金属粉末とセラミック粉末との付着を例に挙げて説明すれば以下の通りである。金属粉末とセラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている場合、金属粉末の全てがセラミック粉末と付着し合っている必要はなく、金属粉末の少なくとも一部がセラミック粉末と付着し合っていればよい。また、セラミック粉末の全てが金属粉末と付着し合っている必要はなく、セラミック粉末の少なくとも一部が金属粉末と付着し合っていればよい。その他のセラミック粉末と希土類粉末との付着等についても同様のことが言える。

[0054] 上述の通り、本実施の形態の製造脱脂前の未焼成廃棄物は、金属粉末と、セラミック粉末と、希土類粉末と、樹脂成分と、を含む。さらに言えば、本実施の形態の製造脱脂前の未焼成廃棄物は、金属粉末含有物と希土類粉末含有物とを含む。ここで、金属粉末含有物は金属粉末及びセラミック粉末を含むものをいうものとする。また、希土類粉末含有物は希土類粉末及びセラミック粉末を含むものをいうものとする。そして、本実施の形態では、金属粉末含有物は金属粉末及び第2のセラミック粉末を含むものをいい、金属粉末

と第2のセラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている。
また、本実施の形態では、希土類粉末含有物は希土類粉末及び第1のセラミック粉末を含むものをいい、希土類粉末と第1のセラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている。

[0055] 樹脂成分は、誘電体シート及び内部電極層用の導電性ペーストを生成するためのバインダ及び溶剤である。バインダ及び溶剤は、樹脂成分を含んで構成されるものであり、樹脂成分としては、例えば、エポキシ樹脂、フェノキシ樹脂、フェノール樹脂、ウレタン樹脂、ポリイミド樹脂などの公知の種々の熱硬化性樹脂を使用することができる。なお、前述の通り、Si等の無機元素は脱脂（製造脱脂、リサイクル脱脂等の脱脂を含む）によっても除去することが困難であり、この無機元素がコンタミとして製造脱脂前の未焼成廃棄物中に残存することにより希土類成分及び金属成分の分離回収に悪影響を与える。よって、樹脂成分としては、Si等の無機元素のような脱脂（製造脱脂、リサイクル脱脂等の脱脂を含む）において除去することが困難なものを含まない樹脂が好ましい。

[0056] 図5を用いて製造脱脂前の未焼成廃棄物である積層チップにおける粉末の状態について説明する。図5に示されている製造脱脂前の未焼成廃棄物は（工程5）の製造脱脂及び（工程6）の積層チップの焼成を経る前の廃棄物である。図5の模式図では、この製造脱脂前の未焼成廃棄物に含まれる各種粉末の状態が表されている。なお、図5では樹脂成分の図示を省略している。図5に示すように、本実施の形態では、未焼成時のセラミック層14__Uは第1のセラミック粉末（図5中のBT₁）を主として含んで構成されている。そして、未焼成時のセラミック層14__Uでは、第1のセラミック粉末と希土類粉末（図5中のD_y）とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている。図5の例に示すように、第1のセラミック粉末の表面に希土類粉末が主として付着した状態となっており、基本的には第1のセラミック粉末の内部に希土類粉末が入り込んで化学的に結合した状態ではない。また、本実施の形態では、未焼成時の内部電極層16__Uは金属粉末（図5中のNi）を主と

して含んで構成されている。そして、未焼成時の内部電極層 16 __ U では、金属粉末と第 2 のセラミック粉末（図 5 中の B T₂）とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている。図 5 の例に示すように、金属粉末の表面に第 2 のセラミック粉末が主として付着した状態となっており、基本的には金属粉末の内部に第 2 のセラミック粉末が入り込んで化学的に結合した状態ではない。

[0057] （工程（E）：リサイクル脱脂）

工程（E）では、製造脱脂前の未焼成廃棄物から樹脂成分を除去する。以下、ここでの樹脂成分の除去をリサイクル脱脂という。リサイクル脱脂は、例えば製造脱脂前の未焼成廃棄物を所定の脱脂温度により脱脂することにより行われる。リサイクル脱脂における脱脂温度は、例えば、製造脱脂前の未焼成廃棄物に含まれる金属粉末、セラミック粉末及び希土類粉末などの少なくともいずれかにおいて化学的な結合が開始する手前の温度である。製造脱脂前の未焼成廃棄物の焼成における化学的な結合には、例えば、金属粉末とセラミック粉末との化学的な結合、セラミック粉末と希土類粉末との化学的な結合、金属粉末と希土類粉末との化学的な結合、金属粉末とセラミック粉末と希土類粉末との化学的な結合などが含まれる。リサイクル脱脂における脱脂温度は、例えば 600℃以上 1000℃以下であることが好ましい。リサイクル脱脂における脱脂の時間は樹脂成分がなくなるまで行われるのが好ましい。また、リサイクル脱脂における脱脂の時間は、製造脱脂前の未焼成廃棄物の量、脱脂温度等によるが、例えば約 1 時間以上約 24 時間以下である。また、リサイクル脱脂は、窒素雰囲気、水素と水とを含む雰囲気等の還元雰囲気において行われることが好ましい。

[0058] 製造脱脂前の未焼成廃棄物には樹脂成分が含まれており、例えば工程（C）の磁性分離において樹脂成分が金属粉末含有物と希土類粉末含有物との分離を阻害し得る。そこで、前述の工程（E）において樹脂成分を除去するリサイクル脱脂が行われる。リサイクル脱脂は製造脱脂前の未焼成廃棄物を例えば所定の脱脂温度で脱脂することにより行われる。しかし、この焼成によ

り製造脱脂前の未焼成廃棄物に含まれる粉末どうしが化学的に結合してしまうと、まずは金属粉末含有物と希土類粉末含有物との分離が困難となり、ひいては金属成分及び希土類成分の分離回収が困難となる。そこで、リサイクル脱脂における脱脂温度を、上述の通り、製造脱脂前の未焼成廃棄物に含まれる金属粉末、セラミック粉末及び希土類粉末などの少なくともいずれかにおいて化学的な結合が開始する手前の温度としている。これにより、まずは金属粉末含有物と希土類粉末含有物とを分離し易くすることができる。そして、ひいては、金属成分及び希土類成分等を高品位で分離回収し易くすることができる。

[0059] また、リサイクル脱脂における脱脂温度を上述の通り600℃以上1000℃以下とすることにより、製造脱脂前の未焼成廃棄物に含まれる金属粉末、セラミック粉末及び希土類粉末などの少なくともいずれかにおいて化学的な結合を抑制することができる。よって、製造脱脂前の未焼成廃棄物から金属成分と希土類成分とを容易に分離し易い。

なお、上記ではリサイクル脱脂における脱脂温度を600℃以上1000℃以下としている。しかし、リサイクル脱脂における脱脂温度の下限値は、製造脱脂前の未焼成廃棄物中の樹脂成分が未焼成の状態で残存する温度より高い温度等を考慮して設定することができる。また、リサイクル脱脂における脱脂温度の上限値は、リサイクル脱脂における脱脂温度の上限値まで製造脱脂前の未焼成廃棄物の温度を上昇させるのに要する電力量、リサイクル脱脂後に残存した樹脂成分を含む溶液の河川への排水基準等を考慮して設定することができる。

[0060] (工程(B):微細化)

工程(B)では、製造脱脂前の未焼成廃棄物を微細化する。例えば、これに限定されないが、製造脱脂前の未焼成廃棄物を粉砕することにより微細化する。粉砕は、これに限定されないが、例えば振動ミル等を用いて対象物に振動による粉砕力を与える方法、対象物をすり潰す方法、対象物に打撃による粉砕力を与える方法等により行われる。製造脱脂前の未焼成廃棄物に含ま

れる金属粉末及びセラミック粉末等の各成分の粒径程度、例えば誘電体スラリー及び内部電極層用の導電性ペースト等の原料となる際の各成分の粒径程度にまで製造脱脂前の未焼成廃棄物を微細化することが好ましい。これにより、各成分の分離回収が容易となるためである。微細化された後の製造脱脂前の未焼成廃棄物の平均粒径は限定されない。平均粒径は、例えばふるいを用いて求めることができる。

[0061] (工程 (C) : 磁性分離)

工程 (C) の磁性分離では、工程 (B) において微細化された後の製造脱脂前の未焼成廃棄物を、磁石を用いて磁性分離する。つまり、金属粉末含有物と、希土類粉末含有物とに分離して回収する。

[0062] 磁性分離後の金属粉末含有物は、内部電極層の主成分である例えば Ni (図 1 中の金属粉末含有物の Ni) 等の金属粉末を主として含む。この金属粉末含有物中の金属粉末の表面等には、 BaTiO_3 等のセラミック粉末、具体的には第 2 のセラミック粉末 (図 1 中の金属粉末含有物の BT_2) が付着している。ここで金属粉末は、磁性を有する金属を含む。一方、第 2 のセラミック粉末は磁性を有さない。磁性分離により、金属粉末含有物は磁着物として分離される。具体的には、金属粉末含有物においては、磁性を有する金属粉末が磁着物として分離される際に、この金属粉末に磁性を有さない第 2 のセラミック粉末が付着して巻き込まれた状態となっている。ただし、金属粉末含有物中の金属粉末の表面等に第 2 のセラミック粉末が必ずしも付着していない場合もあるし、金属粉末の表面等にその他の粉末が付着している場合もある。その他の粉末は、例えば、第 1 のセラミック粉末、希土類粉末、セラミックや希土類成分以外の添加物 (Mg 、 Mn 、 V など) の粉末等が挙げられる。

[0063] この磁性分離により、金属粉末含有物を金属成分として分離回収することができる。例えば、 Ni 等の金属粉末の表面等に第 2 のセラミック粉末である BaTiO_3 が付着したものを含む金属粉末含有物を金属成分として分離回収することができる。なお、本発明では、金属成分の分離回収には、金属成

分そのものを分離回収することだけでなく、金属粉末含有物を金属成分として分離回収することが含まれる。

[0064] なお、金属成分には、金属原子そのもの、金属原子が他の原子等と化学的に反応した反応物である金属成分化合物、金属原子の溶液、金属成分化合物の溶液等が含まれる。また、金属成分の状態は、液体状態、固体状態、液体及び固体の混合状態のいずれであってもよい。また、金属成分は、非晶質の状態、結晶質の状態、非晶質及び結晶質が混在した状態のいずれであってもよい。

[0065] また、磁性分離後の希土類粉末含有物は、未焼成時のセラミック層の主成分である例えば BaTiO_3 等のセラミック粉末、具体的には第1のセラミック粉末（図1中の希土類粉末含有物の BT_1 ）を主として含む。この希土類粉末含有物の第1のセラミック粉末の表面等には、 Dy 等の希土類粉末（図1中の希土類粉末含有物の Dy ）が付着している。ここで、第1のセラミック粉末及び希土類粉末は磁性を有さない。よって、磁性分離により、第1のセラミック粉末及び希土類粉末は非磁着物として分離される。ただし、希土類粉末含有物中の第1のセラミック粉末の表面等に希土類粉末が必ずしも付着していない場合もあるし、第1のセラミック粉末の表面等にその他の粉末が付着している場合もある。

[0066] この磁性分離により希土類粉末含有物を希土類成分として分離回収することができる。例えば、 BaTiO_3 等の第1のセラミック粉末の表面等に希土類粉末である Dy が付着したものを主として含む希土類粉末含有物を希土類成分として分離回収することができる。なお、本発明では、希土類成分の分離回収には、希土類成分そのものを分離回収することだけでなく、希土類粉末含有物を希土類成分として分離回収することが含まれる。

[0067] なお、希土類成分には、希土類原子そのもの、希土類原子が他の原子等と化学的に反応した反応物である希土類成分化合物、希土類原子の溶液、希土類成分化合物の溶液等が含まれる。また、希土類成分の状態は、液体状態、固体状態、液体及び固体の混合状態のいずれであってもよい。また、希土類

成分は、非晶質の状態、結晶質の状態、非晶質及び結晶質が混在した状態のいずれであってもよい。

[0068] なお、磁性分離の際に、工程（B）において微細化された後の製造脱脂前の未焼成廃棄物を水又は有機溶媒と混合して分散することにより混合状態とした後、磁石を用いて分離することが好ましい。有機溶媒としては、アルコール系の有機溶媒や、炭化水素系の有機溶媒を挙げることができる。例えば、有機溶媒として、メタノール、エタノール、プロパノール、トルエン、キシレン、シクロヘキサン又はそれらの混合物などを用いることができる。

[0069] 微細化された後の製造脱脂前の未焼成廃棄物を水又は有機溶媒と混合して混合状態、つまりスラリー状態とすると、微細化された後の製造脱脂前の未焼成廃棄物に含まれる金属粉末含有物と希土類粉末含有物とを分散した状態とすることができる。よって、工程（C）において、金属粉末含有物と希土類粉末含有物とを磁石を用いて分離し易い。微細化された後の製造脱脂前の未焼成廃棄物が乾燥した状態であると、金属粉末含有物と希土類粉末含有物とは、スラリー状態の場合よりも分散状態が低い傾向にある。よって、例えば、金属粉末含有物を磁石に引き付ける際に希土類粉末含有物が金属粉末含有物に巻き込まれて磁石に引き付けられ、金属粉末含有物と希土類粉末含有物との分離が困難な場合がある。

[0070] （工程（D）：希土類粉末含有物の溶解）

工程（D）では、工程（C）において分離回収され希土類粉末含有物を鉱酸に溶解する。これにより、希土類粉末含有物に含まれる第1のセラミック粉末を未溶解物として沈殿させるとともに、希土類粉末含有物に含まれる希土類粉末が希土類成分として溶解した希土類成分含有溶液を生成する。鉱酸は、例えば、硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも1種である。このとき希土類成分は希土類成分含有溶液として分離回収される。本発明では、希土類成分の分離回収には、希土類成分そのものを分離回収することだけでなく、希土類成分含有溶液を希土類成分として分離回収することが含まれる。

[0071] 工程（D）において、鉍酸の添加により希土類成分含有溶液がpH 1.5以上pH 2.5以下となるように調整することが好ましい。

[0072] 工程（D）において鉍酸を用いて希土類成分含有溶液をpH 1.5以上pH 2.5以下に調整することにより、主として希土類粉末を希土類成分として鉍酸に溶解することができる。また、pHを上記範囲よりも強酸に調整すると第1のセラミック粉末等が鉍酸に溶解してしまう場合があるため、上記範囲にpHを調整することが好ましい。より好ましくは、希土類成分含有溶液が鉍酸の添加によりpH 2となるように調整する。

[0073] なお、工程（C）においてスラリー状態である製造脱脂前の未焼成廃棄物を磁性分離した場合、分離された希土類粉末含有物は約pH 7のスラリー状態である。このスラリーに鉍酸を添加することによりpH 1.5以上pH 2.5以下に調整された希土類成分含有溶液を生成することもできる。ただし、磁性分離後の希土類粉末含有物はスラリー状態である必要はなく、乾燥状態であってもよい。

[0074] 鉍酸としては、希土類粉末含有物に含まれる第1のセラミック粉末が例えばBaTiO₃である場合、硫酸を用いることが好ましい。硫酸を用いた場合、BaTiO₃である第1のセラミック粉末の表面に不溶性のBaSO₄が形成されるため、第1のセラミック粉末を沈殿させることができる。一方、希土類粉末を硫酸に溶解させることができる。具体的に、例えば、BaTiO₃の表面にDyが付着したものを主として含む希土類粉末含有物を硫酸に溶解することにより、BaTiO₃が沈殿するとともに、Dyが硫酸に溶解した硫酸ジスプロシウム（Dy₂（SO₄）₃）溶液が希土類成分含有溶液として生成される。

[0075] なお、鉍酸としては前述の通り硫酸以外の塩酸等を用いることもできる。ただし、例えば、鉍酸として塩酸を用いた場合は、第1のセラミック粉末であるBaTiO₃の表面に溶解性であるBaCl₂が形成される。よって、第1のセラミック粉末を沈殿させるとともに希土類粉末を溶解させるように塩酸等のpH調整を精度よく行うことが好ましい。

[0076] (工程 (F) : ろ過)

工程 (F) では、工程 (D) において生成された、沈殿している第 1 のセラミック粉末を含む希土類成分含有溶液をろ過することにより、沈殿している第 1 のセラミック粉末と希土類成分含有溶液とを固液分離する。この固液分離により、沈殿している第 1 のセラミック粉末を含む希土類成分含有溶液から、沈殿している第 1 のセラミック粉末が除去された希土類成分含有溶液を希土類成分として分離回収することができる。

[0077] 例えば、工程 (D) において、 $BaTiO_3$ が沈殿するとともに、希土類成分含有溶液として Dy が硫酸に溶解した硫酸ジスプロシウム ($Dy_2(SO_4)_3$) 溶液が生成されているとする。この場合、工程 (F) のろ過により、 $BaTiO_3$ が除去された硫酸ジスプロシウム溶液を希土類成分として分離回収することができる。

[0078] ろ過は、ろ紙 (ろ布) を用いて行うことができる。ろ紙 (ろ布) のメッシュの程度は、沈殿している第 1 のセラミック粉末がろ紙 (ろ布) を通過しない程度であると好ましい。

[0079] 工程 (D) において生成された、沈殿している第 1 のセラミック粉末を含む希土類成分含有溶液を固液分離できればよく、ろ過による固液分離に限定されず、デカンテーション、遠心分離など、公知の方法から適宜選択することにより固液分離することができる。なお、ろ過がより好ましい。

[0080] (工程 (G) : 中和)

工程 (G) では、工程 (F) で得た希土類成分含有溶液を中和することにより、希土類成分を沈殿させて回収する。沈殿した希土類成分は、中和された希土類成分含有溶液を例えばろ過することにより分離回収される。このとき希土類成分は中和により希土類成分化合物 (例えば $Dy(OH)_3$ 等) として分離回収される。本発明では、希土類成分の分離回収には、希土類成分そのものを分離回収することだけでなく、希土類成分が化学的に反応した反応物である希土類成分化合物を希土類成分として分離回収することが含まれる。

- [0081] 中和には、アルカリを用いる。アルカリとしては、例えば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウムなどを挙げることができる。酸化還元電位が変化すると希土類成分が沈殿するpHの範囲が変化し得るが、アルカリとしてこれらを用いることにより希土類成分が沈殿するpHの範囲を安定にすることができる。
- [0082] また、工程（G）の中和では、希土類成分含有溶液をpH6以上pH9以下に調整することにより希土類成分を回収する。これにより、中和反応による沈殿物を希土類成分として効率よく分離回収することができる。より好ましくは、希土類成分含有溶液がアルカリの添加によりpH8となるように調整する。
- [0083] 例えば、工程（F）のろ過において、BaTiO₃が除去された硫酸ジスプロシウム溶液を得ている場合、水酸化ナトリウムによる中和により水酸化ジスプロシウム（Dy(OH)₃）が希土類成分化合物として得られる。つまり、硫酸ジスプロシウム溶液が酸性であるため、アルカリにより中和することにより希土類成分であるジスプロシウムを水酸化ジスプロシウム（Dy(OH)₃）として沈殿させて分離回収することができる。ここで、硫酸ジスプロシウム溶液をアルカリにより中和した溶液をろ過することにより水酸化ジスプロシウム（Dy(OH)₃）を分離回収することができる。ろ過以外にもデカンテーション、遠心分離など、公知の方法を用いることができる。
- [0084] なお、工程（C）の磁性分離で金属粉末含有物として分離されず、希土類粉末含有物に巻き込まれた状態の金属成分（いわゆるコンタミ）がある。よって、工程（D）の溶解において生成された希土類成分含有溶液にコンタミである金属成分が含まれる場合がある。この金属成分は、例えばTi、Mn、Ni等である。そして、工程（G）において希土類成分含有溶液にアルカリを加えて例えばpH3以上pH5以下、好ましくは約pH4に調整することにより、Ti及びMn等を分離回収することができる。この場合、Tiは例えばTi(OH)₄として沈殿し、Mnは例えばMn(OH)₂として沈殿する。よって、約pH4に調整された希土類成分含有溶液をろ過してTi(O

H)₄及びMn(OH)₂等を回収する。

[0085] その後、Ti及びMn等が分離された希土類成分含有溶液にさらにアルカリを加えて上記のようにpH6以上pH9以下、好ましくは約pH8に調整することにより、希土類成分を分離回収する。

[0086] その後、Ti及びMn、希土類成分等が分離された溶液にさらにアルカリを加えて例えばpH9を超えてpH11以下、好ましくは約pH10に調整することにより、Ni等を分離回収することができる。この場合、Niは例えばNi(OH)₂として沈殿する。約pH10に調整された溶液をろ過してNi(OH)₂等を回収する。

[0087] このように段階的な中和及びろ過を繰り返すことにより、希土類成分含有溶液中に含まれる各種成分（コンタミ及び希土類成分等）を分離回収することができる。

[0088] また、上記のような希土類成分含有溶液の段階的な中和においては、希土類成分を分離する前に希土類成分含有溶液をpH3以上pH5以下、好ましくは約pH4に中和する。よって、希土類成分含有溶液からまずTi及びMn等のコンタミを除去することができる。このように希土類成分含有溶液からTi及びMn等のコンタミが除去されているため、これらのコンタミが除去された状態の希土類成分含有溶液を用いて希土類成分の分離をさらに容易にすることができる。

[0089] （工程（H）：金属粉末含有物の溶解）

工程（H）では、工程（C）において分離回収された金属粉末含有物を鉱酸に溶解する。これにより、金属粉末含有物に含まれる第2のセラミック粉末を未溶解物として沈殿させるとともに、金属粉末含有物に含まれる金属粉末が金属成分として溶解した金属成分含有溶液を生成する。鉱酸は、例えば、硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも1種である。このとき金属成分は金属成分含有溶液として分離回収される。本発明では、金属成分の分離回収には、金属成分そのものを分離回収することだけでなく、金属成分含有溶液を金属成分として分離回収することが含まれる。

[0090] 工程（H）において、鉍酸の添加により金属成分含有溶液がpH 1.5以上pH 2.5以下となるように調整することが好ましい。

[0091] 工程（H）において鉍酸を用いて金属成分含有溶液をpH 1.5以上pH 2.5以下に調整することにより、主として金属粉末を金属成分として鉍酸に溶解することができる。また、pHを上記範囲よりも強酸に調整すると第2のセラミック粉末等が鉍酸に溶解してしまう場合があるため、上記範囲にpHを調整することが好ましい。より好ましくは、金属成分含有溶液が鉍酸の添加によりpH 2となるように調整する。

[0092] なお、工程（C）においてスラリー状態の製造脱脂前の未焼成廃棄物を磁性分離した場合、分離された金属粉末含有物は約pH 7のスラリー状態である。このスラリーに鉍酸を添加することによりpH 1.5以上pH 2.5以下に調整された金属成分含有溶液を生成することもできる。ただし、磁性分離後の金属粉末含有物はスラリー状態である必要はなく、乾燥状態であってもよい。

[0093] 鉍酸としては、金属粉末含有物に含まれる第2のセラミック粉末が例えばBaTiO₃である場合、硫酸を用いることが好ましい。硫酸を用いた場合、BaTiO₃である第2のセラミック粉末の表面に不溶性のBaSO₄が形成されるため、第2のセラミック粉末を沈殿させることができる。一方、金属粉末を硫酸に溶解させることができる。具体的に、例えば、Niの表面にBaTiO₃が付着したものを主として含む金属粉末含有物を硫酸に溶解することにより、BaTiO₃が沈殿するとともに、Niが硫酸に溶解した硫酸ニッケル（NiSO₄）溶液が金属成分含有溶液として生成される。

[0094] なお、鉍酸としては前述の通り硫酸以外の塩酸等を用いることもできる。ただし、例えば、鉍酸として塩酸を用いた場合は、第2のセラミック粉末であるBaTiO₃の表面に溶解性であるBaCl₂が形成される。よって、第2のセラミック粉末を沈殿させるとともに金属粉末を溶解させるように塩酸等のpH調整を精度よく行うことが好ましい。

[0095] （工程（I）：各種処理）

工程（I）では、工程（H）において生成された、沈殿している第2のセラミック粉末を含む金属成分含有溶液に各種処理を施すことにより、金属成分を回収する。工程（I）の各種処理における金属成分の回収の一例について以下に説明する。

[0096] 工程（I）の各種処理として、ろ過を挙げることができる。沈殿している第2のセラミック粉末を含む金属成分含有溶液をろ過することにより、沈殿している第2のセラミック粉末と金属成分含有溶液とを固液分離する。この固液分離により、沈殿している第2のセラミック粉末を含む金属成分含有溶液から、沈殿している第2のセラミック粉末が除去された金属成分含有溶液を金属成分として分離回収することができる。

[0097] 例えば、工程（H）において、 BaTiO_3 が沈殿するとともに、金属成分含有溶液としてNiが硫酸に溶解した硫酸ニッケル（ NiSO_4 ）溶液が生成されているとする。この場合、ろ過により、 BaTiO_3 が除去された硫酸ニッケル溶液を得ることができる。

[0098] ろ過は、ろ紙（ろ布）を用いて行うことができる。ろ紙（ろ布）のメッシュの程度は、沈殿している第2のセラミック粉末がろ紙（ろ布）を通過しない程度であると好ましい。また、工程（H）において生成された、沈殿している第2のセラミック粉末を含む金属成分含有溶液を固液分離できればよく、ろ過による固液分離に限定されず、デカンテーション、遠心分離など、公知の方法から適宜選択することにより固液分離することができる。なお、ろ過がより好ましい。

[0099] その他、工程（I）の各種処理として、晶析及び中和等の処理を挙げることができる。そして、前述のろ過で得た金属成分含有溶液を処理することにより、例えば金属成分化合物（例えば NiSO_4 、 NiCl_2 等）として金属成分を分離回収できる。本発明では、金属成分の分離回収には、金属成分そのものを分離回収することだけでなく、金属成分が化学的に反応した反応物である金属成分化合物を金属成分として分離回収することが含まれる。

[0100] （3）作用効果

上記の分離回収方法によれば、製造脱脂前の未焼成廃棄物から、内部電極層を構成する金属成分だけでなく、セラミック層を構成するセラミック粉末に添加されている希土類成分も分離回収することができる。具体的に以下に説明する。

[0101] まず、本願の発明者らは、積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成（積層チップの焼成）前であり製造脱脂前の未焼成廃棄物から、金属成分及び希土類成分を分離回収することに新たに着目した。つまり、焼成（積層チップの焼成）前であり製造脱脂前の未焼成廃棄物においては、金属粉末、セラミック粉末（第1及び第2のセラミック粉末）、希土類粉末等、製造脱脂前の未焼成廃棄物を構成する各材料どうしが焼結により概ね化学的に結合しておらず、各材料において少なくとも一部の粉末が互いに付着した状態で存在していることに新たに着目した。よって、製造脱脂前の未焼成廃棄物は、粉碎等の微細化する工程（B）等により各材料どうしをそれぞれ独立に分離し易い。また、製造脱脂前の未焼成廃棄物中の金属成分及び希土類成分等は、積層セラミックコンデンサの製造に用いられている材料であるため、自然に産出される鉱石に比べて金属成分及び希土類成分の純度が高い。よって、製造脱脂前の未焼成廃棄物を出発点として上記分離回収方法を行うことにより、高い純度の金属成分及び高い純度の希土類成分を分離回収することが可能である。

[0102] また、微細化された後の製造脱脂前の未焼成廃棄物を、工程（C）において磁石を用いて分離することにより金属粉末含有物と希土類粉末含有物とに分離することができる。その後、工程（D）において希土類粉末含有物を鉱酸に溶解することにより、希土類粉末含有物に含まれる希土類粉末が希土類成分として溶解した希土類成分含有溶液を生成することができる。なお、工程（D）において希土類粉末含有物に含まれる第1のセラミック粉末は鉱酸と反応することにより未溶解物となり沈殿するため、希土類粉末含有物に含まれる第1のセラミック粉末と希土類粉末とは分離される。また、製造脱脂前の未焼成廃棄物は焼成（積層チップの焼成）されていないため、希土類粉

末含有物において、例えば希土類粉末は第1のセラミック粉末の表面に付着した状態であり、第1のセラミック粉末と希土類粉末とは焼結した状態ではない。よって、第1のセラミック粉末と希土類粉末とは工程(D)の溶解により容易に分離されやすい。

[0103] これら工程(C)及び工程(D)を含む分離回収方法を経ることにより、微細化後であり製造脱脂前の未焼成廃棄物から希土類成分を希土類成分含有溶液として分離回収することができる。そして、各工程を経ていく過程において希土類成分を含む材料における希土類成分の割合が増加する。よって、例えばDy等の希土類成分を高品位で回収することができる。

[0104] さらに、工程(H)において金属粉末含有物を鉱酸に溶解することにより、金属粉末含有物に含まれる金属粉末が金属成分として溶解した金属成分含有溶液を生成することができる。なお、工程(H)において金属粉末含有物に含まれる第2のセラミック粉末は鉱酸と反応することにより未溶解物となり沈殿するため、金属粉末含有物に含まれる第2のセラミック粉末と金属粉末とは分離される。また、製造脱脂前の未焼成廃棄物は焼成(積層チップの焼成)されていないため、金属粉末含有物において、例えば金属粉末の表面に第2のセラミック粉末が付着した状態であり、金属粉末と第2のセラミック粉末とは焼結した状態ではない。よって、金属粉末と第2のセラミック粉末とは工程(H)の溶解により容易に分離されやすい。

[0105] これら工程(C)及び工程(H)を含む分離回収方法を経ることにより、微細化後であり製造脱脂前の未焼成廃棄物から金属成分含有溶液を金属成分として分離回収することができる。そして、各工程を経ていく過程において金属成分を含む材料における金属成分の割合が増加する。よって、例えばNi等の金属成分を高品位で回収することができる。

[0106] 上述の通り積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される製造脱脂前の未焼成廃棄物を利用して金属成分及び希土類成分等の分離回収を行うため、製造脱脂前の未焼成廃棄物を廃棄物として廃棄するのではなく、資源として利用することができ環境負荷を抑制することができる。

[0107] 2. 実験例

以下に、実験例として、製造脱脂前の未焼成廃棄物から金属成分及び希土類成分を回収した実施例を説明する。

[0108] [実施例]

製造脱脂前の未焼成廃棄物を 10 g 準備した。10 g の製造脱脂前の未焼成廃棄物は、金属粉末である Ni を 34 質量% (3.4 g)、セラミック粉末である BaTiO₃ を 52 質量% (5.2 g)、希土類粉末である Dy を 2 質量% (0.2 g)、樹脂成分を 10 質量% (1.0 g)、Mg、Mn、SiO₂ 等のコンタミを 2 質量% (0.2 g) 含む (工程 (A))。この製造脱脂前の未焼成廃棄物をリサイクル脱脂するために脱脂温度 800℃ で 2 時間焼成した (工程 (E))。リサイクル脱脂後であり製造脱脂前の未焼成廃棄物を粉砕して微細化した (工程 (B))。粉砕による微細化後の製造脱脂前の未焼成廃棄物を 100 ml の水と混合してスラリーを作成した。このスラリーを磁石を用いて磁性分離した。この磁性分離により、Ni に BaTiO₃ が付着したものを主として含む金属粉末含有物を 3.4 g 分離回収し、BaTiO₃ に Dy が付着したものを主として含む希土類粉末含有物を 5.0 g 分離回収した (工程 (C))。その後、5.0 g の希土類粉末含有物に 100 ml の水を加え、1 mol% の硫酸を少しずつ添加して pH 2 になるまで調整した。これにより希土類粉末含有物中の BaTiO₃ を沈殿させ、Dy を硫酸溶液に溶解した (工程 (D))。BaTiO₃ が沈殿し、Dy が硫酸溶液に溶解した状態の溶液をろ過し、90 ml の硫酸ジスプロシウム (Dy₂(SO₄)₃) 溶液を得た (工程 (F))。90 ml の硫酸ジスプロシウム溶液にアルカリとして 1 mol% の苛性ソーダ溶液を少しずつ添加して pH 8 になるまで調整した (工程 (G))。この溶液をろ過して、0.2 g の Dy(OH)₃ を分離回収した。よって、本工程を経ることで製造脱脂前の未焼成廃棄物に含まれる Dy のうちおよそ 60% の Dy を回収した。

[0109] また、工程 (C) において回収した、Ni に BaTiO₃ が付着したものを主として含む金属粉末含有物 3.4 g に 100 ml の水を加え、1 mol%

の硫酸を少しずつ添加してpH2になるまで調整した。これによりNiにBaTiO₃が付着したものを主として含む金属粉末含有物中のBaTiO₃を沈殿させ、Niを硫酸溶液に溶解した（工程（H））。BaTiO₃が沈殿し、Niが硫酸溶液に溶解した状態の溶液をろ過し、90mlの硫酸ニッケル（Ni（SO₄））溶液を得た（工程（I））。90mlの硫酸ニッケル溶液にアルカリとして1mol%の苛性ソーダ溶液を少しずつ添加してpH10になるまで調整した。この溶液をろ過して、4.3gのNi（OH）₂を分離回収した。よって、本工程を経ることで製造脱脂前の未焼成廃棄物中に含まれるNiのうちおよそ80%のNiを回収した。

[0110] [実験結果]

上記の実験から、本実施の形態に係る分離回収方法によれば、積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される製造脱脂前の未焼成廃棄物を出発原料とした上で、磁性分離及び中和による浸出等の工程を経ることにより簡易に高品位のDy及びNi等の希土類成分及び金属成分を分離精製することができる。つまり、製造脱脂前の未焼成廃棄物を出発点とすることにより、鉱石を出発点としてDy及びNiを精製する場合と比較して簡易なプロセスにより高品位のDy及びNi等の金属を分離精製することができる。

[0111] 3. 変形例

第1の実施の形態に係る変形例について以下に説明する。

[0112] （1）工程（B）におけるスラリーの生成

（1-1）有機溶媒によるスラリーの生成

上記の第1の実施の形態では、工程（B）において製造脱脂前の未焼成廃棄物を粉砕して微細化している。しかし、製造脱脂前の未焼成廃棄物を微細化できればよく、工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）とともに、又は工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）の代わりに、製造脱脂前の未焼成廃棄物を例えば有機溶媒により分散したスラリー状態とすることにより微細化してもよい。ここで、製造脱脂前の未焼成廃棄物と溶媒（有機溶媒及び水系溶媒等の溶媒）とを混合してスラリー状とする微細化を湿式

微細化という。また、湿式微細化の中でも、製造脱脂前の未焼成廃棄物と溶媒とを混合して生成したスラリーの中で粉砕する微細化を湿式粉砕というものとする。

[0113] この場合、分離回収方法は、共通の分離回収ルートとして、工程（A）の製造脱脂前の未焼成廃棄物の準備と、工程（E）のリサイクル脱脂と、製造脱脂前の未焼成廃棄物の有機溶媒への混合（工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）とともに、又は、工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）の代わりに行われる）と、工程（C）の磁性分離と、をこの順序で含む。このように製造脱脂前の未焼成廃棄物を有機溶媒に混合する場合には、工程（C）の磁性分離の後に、当該有機溶媒を除去する留去の工程がさらに含まれることが好ましい。

[0114] また、分離回収方法は、共通の分離回収ルートに引き続いて、希土類成分の分離回収ルートとして、工程（D）の希土類粉末含有物の溶解を含む。なお、希土類成分の分離回収ルートにおいて、追加的に、工程（F）のろ過、工程（G）の中和が行われてもよい。また、分離回収方法は、共通の分離回収ルートに引き続いて、金属成分の分離回収ルートとして、工程（H）の金属粉末含有物の溶解を含む。なお、金属成分の分離回収ルートとして、追加的に、工程（I）の各種処理が行われてもよい。

[0115] つまり、分離回収方法は、共通の分離回収ルートとして、例えば、工程（A）の製造脱脂前の未焼成廃棄物の準備と、工程（E）のリサイクル脱脂と、製造脱脂前の未焼成廃棄物の有機溶媒への混合によるスラリーの生成と、工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）と、工程（C）の磁性分離と、をこの順序で含み、さらには工程（C）の磁性分離の後に有機溶媒を除去する留去の工程が含まれると好ましい。この共通の分離回収ルートの順序を変更することにより、工程（A）の製造脱脂前の未焼成廃棄物の準備と、工程（E）のリサイクル脱脂と、工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）と、粉砕により微細化された製造脱脂前の未焼成廃棄物の有機溶媒への混合によるスラリーの生成と、工程（C）の磁性分離と、がこの順序で行

われ、さらには工程（C）の磁性分離の後に有機溶媒を除去する留去の工程が行われると好ましい。

あるいは、共通の分離回収ルートは、工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）を省略することにより、例えば、工程（A）の製造脱脂前の未焼成廃棄物の準備と、工程（E）のリサイクル脱脂と、製造脱脂前の未焼成廃棄物の有機溶媒への混合によるスラリーの生成と、工程（C）の磁性分離と、をこの順序で含み、さらには工程（C）の磁性分離の後に有機溶媒を除去する留去の工程が含まれると好ましい。

[0116] 有機溶媒としては、アルコール系の有機溶媒や、炭化水素系の有機溶媒を挙げることができる。例えば、有機溶媒として、メタノール、エタノール、プロパノール、トルエン、キシレン、シクロヘキサン又はそれらの混合物などを用いることができる。

[0117] なお、上記の第1の実施の形態では、工程（E）のリサイクル脱脂において製造脱脂前の未焼成廃棄物中の樹脂成分を除去している。しかし、前述のように製造脱脂前の未焼成廃棄物を有機溶媒を用いてスラリー状態とした場合には、製造脱脂前の未焼成廃棄物中の樹脂成分が有機溶媒に溶解する場合がある。つまり、製造脱脂前の未焼成廃棄物を有機溶媒に混合して分散させることにより、製造脱脂前の未焼成廃棄物中の樹脂成分を除去することができるため、工程（E）のリサイクル脱脂を省略することができる。

[0118] なお、製造脱脂前の未焼成廃棄物を有機溶媒に混合することにより、製造脱脂前の未焼成廃棄物を微細化することも可能である。この場合、工程（B）において粉砕を伴わずに製造脱脂前の未焼成廃棄物を微細化できる場合もある。

[0119] これらのことから、分離回収方法は、共通の分離回収ルートとして、工程（A）の製造脱脂前の未焼成廃棄物の準備と、製造脱脂前の未焼成廃棄物の有機溶媒への混合（工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）とともに、又は、工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）の代わりに行われる）と、工程（C）の磁性分離と、を含む。なお、製造脱脂前の未焼成廃

棄物が有機溶媒に混合されているため、工程（C）の磁性分離の後に、当該有機溶媒を除去する留去の工程がさらに含まれることが好ましい。また、分離回収方法は、共通の分離回収ルートに引き続いて、希土類成分の分離回収ルートとして、工程（D）の希土類粉末含有物の溶解を含む。なお、希土類成分の分離回収ルートにおいて、追加的に、工程（F）のろ過、工程（G）の中和が行われてもよい。また、分離回収方法は、共通の分離回収ルートに引き続いて、金属成分の分離回収ルートとして、工程（H）の金属粉末含有物の溶解を含む。なお、金属成分の分離回収ルートとして、追加的に、工程（I）の各種処理が行われてもよい。

[0120] つまり、分離回収方法は、共通の分離回収ルートとして、例えば、工程（A）の製造脱脂前の未焼成廃棄物の準備と、製造脱脂前の未焼成廃棄物の有機溶媒への混合によりリサイクル脱脂されたスラリーの生成と、工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）と、工程（C）の磁性分離と、をこの順序で含み、さらには工程（C）の磁性分離の後に有機溶媒を除去する留去の工程が含まれると好ましい。この共通の分離回収ルートの順序を変更することにより、分離回収方法は、工程（A）の製造脱脂前の未焼成廃棄物の準備と、工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）と、粉砕により微細化された製造脱脂前の未焼成廃棄物の有機溶媒への混合によりリサイクル脱脂されたスラリーの生成と、工程（C）の磁性分離と、がこの順序で行われ、さらには工程（C）の磁性分離の後に有機溶媒を除去する留去の工程が行われると好ましい。

あるいは、共通の分離回収ルートは、工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）を省略することにより、例えば、工程（A）の製造脱脂前の未焼成廃棄物の準備と、製造脱脂前の未焼成廃棄物の有機溶媒への混合によりリサイクル脱脂されたスラリーの生成と、工程（C）の磁性分離と、をこの順序で含み、さらには工程（C）の磁性分離の後に有機溶媒を除去する留去の工程が含まれると好ましい。

[0121] また、上記の第1の実施形態では、工程（C）の磁性分離の際に、工程（

B)において微細化された後の製造脱脂前の未焼成廃棄物を水又は有機溶媒と混合して分散することによりスラリー状態としている。しかし、前述のように工程(B)の微細化とともに、又は工程(B)の微細化の代わりに、製造脱脂前の未焼成廃棄物を有機溶媒を用いてスラリー状態とした場合には、このスラリー状態となった製造脱脂前の未焼成廃棄物を工程(C)において磁性分離してもよい。つまり、工程(C)の磁性分離においてスラリー状態を生成する手間を省略することができる。

[0122] (1-2) 水系溶媒によるスラリーの生成

上記では有機溶媒によりスラリーを生成しているが、水系溶媒を用いてスラリーを生成してもよい。この場合、分離回収方法は、共通の分離回収ルートとして、工程(A)の製造脱脂前の未焼成廃棄物の準備と、工程(E)のリサイクル脱脂と、製造脱脂前の未焼成廃棄物の水系溶媒への混合(工程(B)の微細化(特に、粉碎による微細化)とともに、又は、工程(B)の微細化(特に、粉碎による微細化)の代わりに行われる)と、工程(C)の磁性分離と、をこの順序で含む。また、分離回収方法は、共通の分離回収ルートに引き続いて、希土類成分の分離回収ルートとして、工程(D)の希土類粉末含有物の溶解を含む。なお、希土類成分の分離回収ルートにおいて、追加的に、工程(F)のろ過、工程(G)の中和が行われてもよい。また、分離回収方法は、共通の分離回収ルートに引き続いて、金属成分の分離回収ルートとして、工程(H)の金属粉末含有物の溶解を含む。なお、金属成分の分離回収ルートとして、追加的に、工程(I)の各種処理が行われてもよい。

[0123] つまり、分離回収方法は、共通の分離回収ルートとして、例えば、工程(A)の製造脱脂前の未焼成廃棄物の準備と、工程(E)のリサイクル脱脂と、製造脱脂前の未焼成廃棄物の水系溶媒への混合によるスラリーの生成と、工程(B)の微細化(特に、粉碎による微細化)と、工程(C)の磁性分離と、をこの順序で含む。この共通の分離回収ルートの順序を変更することにより、工程(A)の製造脱脂前の未焼成廃棄物の準備と、工程(E)のリサ

イクル脱脂と、工程（Ｂ）の微細化（特に、粉碎による微細化）と、粉碎により微細化された製造脱脂前の未焼成廃棄物の水系溶媒への混合によるスラリーの生成と、工程（Ｃ）の磁性分離と、がこの順序で行われることもできる。

あるいは、共通の分離回収ルートは、工程（Ｂ）の微細化（特に、粉碎による微細化）を省略することにより、例えば、工程（Ａ）の製造脱脂前の未焼成廃棄物の準備と、工程（Ｅ）のリサイクル脱脂と、製造脱脂前の未焼成廃棄物の水系溶媒への混合によるスラリーの生成と、工程（Ｃ）の磁性分離と、をこの順序で含む。

なお、水系溶媒としては、例えば水を用いることができる。

[0124] また、上記の第１の実施形態では、工程（Ｃ）の磁性分離の際に、工程（Ｂ）において微細化された後の製造脱脂前の未焼成廃棄物を水又は有機溶媒と混合して分散することによりスラリー状態としている。しかし、前述のように工程（Ｂ）の微細化とともに、又は工程（Ｂ）の微細化の代わりに、製造脱脂前の未焼成廃棄物を水系溶媒を用いてスラリー状態とした場合には、このスラリー状態となった製造脱脂前の未焼成廃棄物を工程（Ｃ）において磁性分離してもよい。つまり、工程（Ｃ）の磁性分離においてスラリー状態を生成する手間を省略することができる。

[0125] （２）分離回収方法における工程（Ｅ）のリサイクル脱脂の位置

上記の第１の実施の形態では、図１に示す分離回収方法において、工程（Ｅ）のリサイクル脱脂は、工程（Ａ）と工程（Ｂ）との間において行われている。つまり、図１では、工程（Ａ）において準備された製造脱脂前の未焼成廃棄物をリサイクル脱脂（工程（Ｅ））した後、製造脱脂前の未焼成廃棄物（リサイクル脱脂された製造脱脂前の未焼成廃棄物）が工程（Ｂ）において微細化されている。しかし、工程（Ｅ）のリサイクル脱脂は、工程（Ｃ）の磁性分離により分離された希土類粉末含有物及び金属粉末含有物が工程（Ｄ）及び工程（Ｈ）において鉱酸に溶解される前に行われていればよく、工程（Ａ）と工程（Ｂ）との間に限定されない。

[0126] 例えば、工程（E）のリサイクル脱脂は、工程（B）と工程（C）との間において行われてもよい。つまり、工程（A）で準備した製造脱脂前の未焼成廃棄物が工程（B）において微細化されたものをリサイクル脱脂することができる。この場合、分離回収方法のうち共通の分離回収ルートは、工程（A）の製造脱脂前の未焼成廃棄物の準備と、工程（B）の微細化と、工程（E）のリサイクル脱脂と、工程（C）の磁性分離と、をこの順序で含む。

[0127] また、例えば、工程（E）のリサイクル脱脂は、工程（C）と工程（D）及び工程（H）との間において行われてもよい。よって、工程（C）での磁性分離後、希土類粉末含有物を工程（D）の前にリサイクル脱脂することができる。また、金属粉末含有物を工程（H）の前にリサイクル脱脂することができる。この場合、分離回収方法のうち共通の分離回収ルートは、工程（A）の製造脱脂前の未焼成廃棄物の準備と、工程（B）の微細化と、工程（C）の磁性分離と、工程（E）のリサイクル脱脂と、をこの順序で含む。そして、工程（E）のリサイクル脱脂では、工程（C）の磁性分離で回収された希土類粉末含有物がリサイクル脱脂され、一方、工程（C）の磁性分離で回収された金属粉末含有物がリサイクル脱脂される。

[0128] また、工程（E）のリサイクル脱脂は、工程（B）の微細化において行われてもよい。つまり、工程（B）の微細化の過程において、製造脱脂前の未焼成廃棄物から樹脂成分をリサイクル脱脂することができる。例えば、工程（B）において、製造脱脂前の未焼成廃棄物を有機溶媒に混合することによりリサイクル脱脂するとともに、微細化することができる。この場合、分離回収方法のうち共通の分離回収ルートは、工程（A）の製造脱脂前の未焼成廃棄物の準備と、工程（B）での有機溶媒との混合による微細化と、工程（C）の磁性分離と、をこの順序で含む。

[0129] （3）製造脱脂の別の態様

上記の第1の実施の形態では、工程5において製造脱脂を行い、工程6において積層チップの焼成を行っている。しかし、工程5及び工程6の両方を合わせて1つの工程としてもよい。例えば、工程4を経た後の積層チップを

1000℃より高く1400℃以下で焼成することにより、積層チップ中の樹脂成分を製造脱脂するとともに積層チップを焼成して焼結させる。この場合、製造脱脂前の未焼成廃棄物は、工程5及び工程6の両方を含む工程の前の廃棄物である。

[0130] (4) 製造脱脂前の未焼成廃棄物

上記の第1の実施の形態では、積層セラミックコンデンサ10の製造方法には、(工程3)の積層ブロックの形成、(工程4)の積層チップへのカット、(工程5)の製造脱脂、(工程6)の積層チップの焼成、(工程7)の下地電極層用ペーストの塗布及び焼成が順に含まれている。しかし、積層セラミックコンデンサ10の製造方法はこれに限定されず、例えば、工程5の製造脱脂前であり、工程6の焼成(積層チップの焼成)前の未焼成の積層チップに対して下地電極層用ペーストを塗布した後に製造脱脂、及び、焼成を行う場合がある。つまり、まず、工程5の製造脱脂前の積層チップに対して、Ni、ガラス成分、樹脂成分等を含む下地電極層用ペーストを塗布する。次に、下地電極層用ペーストが塗布された積層チップを製造脱脂し、さらにその後に焼成する。製造脱脂時の温度は、例えば、800℃より高く、1000℃以下であることが好ましい。焼成温度は、例えば、1000℃より高く、1400℃以下であることが好ましい。これらの工程は、上記の製造方法の工程4の積層チップへのカットの後であり工程8のめっき工程の前に行われる。そして、これらの工程では、上記の工程6の積層チップの焼成と工程7の下地電極層用ペーストの焼成とを一度の焼成で行っている。このような製造方法を考慮した場合には、製造脱脂前の未焼成廃棄物として、上記の実施の形態において挙げたものに加えて、下地電極層用ペーストが塗布された後の未焼成(工程6の焼成と工程7の焼成とが一度に行われる焼成前)である製造脱脂前(工程5の製造脱脂前)の積層チップの廃棄物が含まれる。この場合、下地電極層用ペースト内のNi粉末が分離・回収の対象に含まれる。なお、下地電極層用ペーストの中に、セラミック粉末からなる共材が更に含まれていてもよい。

[0131] <第2の実施の形態>

1. 分離回収方法

この発明の第2の実施の形態に係る、積層セラミックコンデンサの製造工程において排出されるとともに、前記製造工程において製造脱脂された焼成（積層チップの焼成）前の製造脱脂後の未焼成廃棄物から希土類成分及び金属成分を分離回収する分離回収方法について説明する。第2の実施の形態に係る分離回収方法は、第1の実施の形態に係る分離回収方法とは処理対象が異なる。つまり、第1の実施の形態に係る分離回収方法の処理対象が製造脱脂前の未焼成廃棄物であるのに対して、第2の実施の形態に係る分離回収方法の処理対象は製造脱脂後の未焼成廃棄物である。第1の実施の形態と同様の内容については説明を簡略化するか省略する。

[0132] 図6は、この発明の第2の実施の形態に係る、積層セラミックコンデンサの製造工程において排出されるとともに、前記製造工程において製造脱脂された焼成（積層チップの焼成）前の製造脱脂後の未焼成廃棄物から希土類成分及び金属成分を分離回収する分離回収方法を示すフロー図である。この発明の第2の実施の形態に係る分離回収方法では、分離回収の出発点として積層セラミックコンデンサの製造工程において排出されるとともに、前記製造工程において製造脱脂された焼成（積層チップの焼成）前の製造脱脂後の未焼成廃棄物を用いる。製造脱脂後の未焼成廃棄物について説明する。

[0133] （1）製造脱脂後の未焼成廃棄物

積層セラミックコンデンサ10の構成及び製造方法は第1の実施の形態と同様である。

ここで、製造脱脂後の未焼成廃棄物は、積層セラミックコンデンサ10の製造方法のうち、（工程5）において製造工程上の製造脱脂がされた後の廃棄物であるとともに、（工程6）において積層チップの焼成が行われる前の廃棄物である。例えば、製造脱脂後の未焼成廃棄物は、（工程5）において製造脱脂された後の各誘電体シートの積層がずれた状態である等の不良品である積層チップ、また不要となった余分な積層チップ等である。

[0134] (2) 分離回収方法のフロー

図6を参照してこの発明の第2の実施の形態に係る分離回収方法のフローについて説明する。第1の実施の形態に係る分離回収方法とは異なり、第2の実施の形態に係る分離回収方法においては、工程(E)のリサイクル脱脂が省略される。これは、第2の実施の形態に係る分離回収方法では、(工程5)の製造脱脂を経た後の製造脱脂後の未焼成廃棄物を分離回収の対象としているためである。第2の実施の形態に係る分離回収方法におけるその他の点は第1の実施の形態に係る分離回収方法と概ね同じであるが、以下に簡単に説明する。

[0135] 図6の分離回収方法は、共通の分離回収ルートと、希土類成分の分離回収ルートと、金属成分の分離回収ルートと、を含む。希土類成分の分離回収ルート及び金属成分の分離回収ルートそれぞれは、共通の分離回収ルートから分岐する。

[0136] 共通の分離回収ルートは、例えば、工程(A)の製造脱脂後の未焼成廃棄物の準備と、工程(B)の微細化と、工程(C)の磁性分離と、を含む。工程(C)の磁性分離の後、希土類成分の分離回収ルートと金属成分の分離回収ルートとに分岐する。希土類成分の分離回収ルートは、例えば、工程(D)の希土類粉末含有物の溶解を含み、さらに工程(F)のろ過と、工程(G)の中和と、を含むことができる。また、金属成分の分離回収ルートは、例えば、工程(H)の金属粉末含有物の溶解を含み、さらに工程(I)の各種処理を含むことができる。

[0137] (工程(A): 製造脱脂後の未焼成廃棄物の準備)

工程(A)では、積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される製造脱脂後の未焼成廃棄物を準備する。製造脱脂後の未焼成廃棄物は、金属粉末と、セラミック粉末(第1のセラミック粉末、第2のセラミック粉末)と、希土類粉末と、を含む。金属粉末、セラミック粉末及び希土類粉末それぞれは第1の実施の形態において説明した通りである。なお、第1の実施の形態における製造脱脂前の未焼成廃棄物とは異なり、製造脱脂後の未焼成

廃棄物は、工程 5 において積層チップが製造脱脂された後の廃棄物であるため、樹脂成分は概ねあるいは完全に脱脂（除去）されている。なお、製造脱脂前の積層チップ等に含まれる樹脂成分は第 1 の実施の形態と同様である。

[0138] 製造脱脂後の未焼成廃棄物において、金属粉末、セラミック粉末及び希土類粉末は、第 1 の実施の形態と同様に少なくとも部分的に互いに付着し合っている。製造脱脂後の未焼成廃棄物においては、金属粉末、セラミック粉末及び希土類粉末間の付着において樹脂成分は関与していない。しかし、製造脱脂後の未焼成廃棄物における金属粉末、セラミック粉末及び希土類粉末間の付着の態様は、製造脱脂前の未焼成廃棄物における金属粉末、セラミック粉末及び希土類粉末間の付着の態様と概ね同じである。

[0139] そして、製造脱脂後の未焼成廃棄物において、粉末どうしが互いに付着した状態であり、基本的には化学的に結合していないのは、製造脱脂後の未焼成廃棄物が工程 5 の脱脂温度（800℃より高く1000℃以下）で脱脂されているものの、工程 5 の脱脂温度での焼成は、粉末どうしの化学的な結合が可能な程度の焼成ではないからである。さらに、工程 6 の焼成温度（1000℃より高く1400℃以下）による焼成では粉末どうしが化学的に結合し得るが、製造脱脂後の未焼成廃棄物はこの工程 6 を経ていないため、粉末どうしが基本的には化学的に結合しておらず互いに付着した状態である。

[0140] 上述の通り、本実施の形態の製造脱脂後の未焼成廃棄物は、金属粉末と、セラミック粉末と、希土類粉末と、を含む。さらに言えば、本実施の形態の製造脱脂後の未焼成廃棄物は、金属粉末含有物と希土類粉末含有物とを含む。金属粉末含有物及び希土類粉末含有物の構成は第 1 の実施の形態と同様である。つまり、金属粉末含有物は金属粉末及びセラミック粉末を含むものをいうものとする。また、希土類粉末含有物は希土類粉末及びセラミック粉末を含むものをいうものとする。そして、本実施の形態では、金属粉末含有物は金属粉末及び第 2 のセラミック粉末を含むものをいい、金属粉末と第 2 のセラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている。また、本実施の形態では、希土類粉末含有物は希土類粉末及び第 1 のセラミック粉末

を含むものをいい、希土類粉末と第1のセラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている。このような製造脱脂後の未焼成廃棄物の粉末の状態は、樹脂成分が含まれていない点を除いて、第1の実施の形態の図5で説明した製造脱脂前の未焼成廃棄物の粉末の状態と概ね同様である。

[0141] 第1の実施の形態に係る分離回収方法と第2の実施の形態に係る分離回収方法とは、処理対象が製造脱脂前の未焼成廃棄物であるか、製造脱脂後の未焼成廃棄物であるかという点において異なる。大きくは、第2の実施の形態に係る分離回収方法では、共通の分離回収ルートにおいて工程（E）のリサイクル脱脂が含まれていない。希土類成分の分離回収ルート及び金属成分の分離回収ルートは、樹脂成分が脱脂された後の工程であるため、第1及び第2の実施の形態に係る分離回収方法において同じである。

[0142] （3）作用効果

上記の分離回収方法によれば、製造脱脂後の未焼成廃棄物から、内部電極層を構成する金属成分だけでなく、セラミック層を構成するセラミック粉末に添加されている希土類成分も分離回収することができる。具体的に以下に説明する。

[0143] まず、本願の発明者らは、積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成（積層チップの焼成）前であり製造脱脂後の未焼成廃棄物から、金属成分及び希土類成分を分離回収することに新たに着目した。つまり、焼成（積層チップの焼成）前であり製造脱脂後の未焼成廃棄物においては、金属粉末、セラミック粉末（第1及び第2のセラミック粉末）、希土類粉末等、製造脱脂後の未焼成廃棄物を構成する各材料どうしが焼結により概ね化学的に結合しておらず、各材料において少なくとも一部の粉末が互いに付着した状態で存在していることに新たに着目した。よって、製造脱脂後の未焼成廃棄物は、粉碎等の微細化する工程（B）等により各材料どうしをそれぞれ独立に分離し易い。また、製造脱脂後の未焼成廃棄物中の金属成分及び希土類成分等は、積層セラミックコンデンサの製造に用いられている材料であるため、自然に産出される鉱石に比べて金属成分及び希土類成分の純度が

高い。よって、製造脱脂後の未焼成廃棄物を出発点として上記分離回収方法を行うことにより、高い純度の金属成分及び高い純度の希土類成分を分離回収することが可能である。

[0144] また、微細化された後の製造脱脂後の未焼成廃棄物を、工程（C）において磁石を用いて分離することにより金属粉末含有物と希土類粉末含有物とに分離することができる。その後、工程（D）において希土類粉末含有物を鉱酸に溶解することにより、希土類粉末含有物に含まれる希土類粉末が希土類成分として溶解した希土類成分含有溶液を生成することができる。なお、工程（D）において希土類粉末含有物に含まれる第1のセラミック粉末は鉱酸と反応することにより未溶解物となり沈殿するため、希土類粉末含有物に含まれる第1のセラミック粉末と希土類粉末とは分離される。また、製造脱脂後の未焼成廃棄物は焼成（積層チップの焼成）されていないため、希土類粉末含有物において、例えば希土類粉末は第1のセラミック粉末の表面に付着した状態であり、第1のセラミック粉末と希土類粉末とは焼結した状態ではない。よって、第1のセラミック粉末と希土類粉末とは工程（D）の溶解により容易に分離されやすい。

[0145] これら工程（C）及び工程（D）を含む分離回収方法を経ることにより、微細化後であり製造脱脂後の未焼成廃棄物から希土類成分含有溶液を希土類成分として分離回収することができる。そして、各工程を経ていく過程において希土類成分を含む材料における希土類成分の割合が増加する。よって、例えばDy等の希土類成分を高品位で回収することができる。

[0146] さらに、工程（H）において金属粉末含有物を鉱酸に溶解することにより、金属粉末含有物に含まれる金属粉末が金属成分として溶解した金属成分含有溶液を生成することができる。なお、工程（H）において金属粉末含有物に含まれる第2のセラミック粉末は鉱酸と反応することにより未溶解物となり沈殿するため、金属粉末含有物に含まれる第2のセラミック粉末と金属粉末とは分離される。また、製造脱脂後の未焼成廃棄物は焼成（積層チップの焼成）されていないため、金属粉末含有物において、例えば金属粉末の表面

に第2のセラミック粉末が付着した状態であり、金属粉末と第2のセラミック粉末とは焼結した状態ではない。よって、金属粉末と第2のセラミック粉末とは工程（H）の溶解により容易に分離されやすい。

[0147] これら工程（C）及び工程（H）を含む分離回収方法を経ることにより、微細化後であり製造脱脂後の未焼成廃棄物から金属成分含有溶液を金属成分として分離回収することができる。そして、各工程を経ていく過程において金属成分を含む材料における金属成分の割合が増加する。よって、例えばNi等の金属成分を高品位で回収することができる。

[0148] 上述の通り積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される製造脱脂後の未焼成廃棄物を利用して金属成分及び希土類成分等の分離回収を行うため、製造脱脂後の未焼成廃棄物を廃棄物として廃棄するのではなく、資源として利用することができ環境負荷を抑制することができる。

[0149] 3. 変形例

第2の実施の形態に係る変形例について以下に説明する。

[0150] （1）工程（B）におけるスラリーの生成

（1-1）有機溶媒によるスラリーの生成

上記の第2の実施の形態では、工程（B）において製造脱脂後の未焼成廃棄物を粉砕して微細化している。しかし、製造脱脂後の未焼成廃棄物を微細化できればよく、工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）とともに、又は工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）の代わりに、製造脱脂後の未焼成廃棄物を例えば有機溶媒により分散したスラリー状態とすることにより微細化してもよい。ここで、製造脱脂後の未焼成廃棄物と溶媒（有機溶媒及び水系溶媒等の溶媒）とを混合してスラリー状とする微細化を湿式微細化という。また、湿式微細化の中でも、製造脱脂後の未焼成廃棄物と溶媒とを混合して生成したスラリーの中で粉砕する微細化を湿式粉砕というものとする。

[0151] この場合、分離回収方法は、共通の分離回収ルートとして、工程（A）の製造脱脂後の未焼成廃棄物の準備と、製造脱脂後の未焼成廃棄物の有機溶媒

への混合（工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）とともに、又は、工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）の代わりに行われる）と、工程（C）の磁性分離と、をこの順序で含む。このように製造脱脂後の未焼成廃棄物を有機溶媒に混合する場合には、工程（C）の磁性分離の後に、当該有機溶媒を除去する留去の工程がさらに含まれることが好ましい。

[0152] また、分離回収方法は、共通の分離回収ルートに引き続いて、希土類成分の分離回収ルートとして、工程（D）の希土類粉末含有物の溶解を含む。なお、希土類成分の分離回収ルートにおいて、追加的に、工程（F）のろ過、工程（G）の中和が行われてもよい。また、分離回収方法は、共通の分離回収ルートに引き続いて、金属成分の分離回収ルートとして、工程（H）の金属粉末含有物の溶解を含む。なお、金属成分の分離回収ルートとして、追加的に、工程（I）の各種処理が行われてもよい。

[0153] つまり、分離回収方法は、共通の分離回収ルートとして、例えば、工程（A）の製造脱脂後の未焼成廃棄物の準備と、製造脱脂後の未焼成廃棄物の有機溶媒への混合によるスラリーの生成と、工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）と、工程（C）の磁性分離と、をこの順序で含み、さらには工程（C）の磁性分離の後に有機溶媒を除去する留去の工程が含まれると好ましい。この共通の分離回収ルートの順序を変更することにより、工程（A）の製造脱脂後の未焼成廃棄物の準備と、工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）と、粉砕により微細化された製造脱脂後の未焼成廃棄物の有機溶媒への混合によるスラリーの生成と、工程（C）の磁性分離と、がこの順序で行われ、さらには工程（C）の磁性分離の後に有機溶媒を除去する留去の工程が行われると好ましい。

あるいは、共通の分離回収ルートは、工程（B）の微細化（特に、粉砕による微細化）を省略することにより、例えば、工程（A）の製造脱脂後の未焼成廃棄物の準備と、製造脱脂後の未焼成廃棄物の有機溶媒への混合によるスラリーの生成と、工程（C）の磁性分離と、をこの順序で含み、さらには工程（C）の磁性分離の後に有機溶媒を除去する留去の工程が含まれると好

ましい。

[0154] 有機溶媒としては、アルコール系の有機溶媒や、炭化水素系の有機溶媒を挙げることができる。例えば、有機溶媒として、メタノール、エタノール、プロパノール、トルエン、キシレン、シクロヘキサン又はそれらの混合物などを用いることができる。

[0155] また、上記の第2の実施形態では、工程（C）の磁性分離の際に、工程（B）において微細化された後の製造脱脂後の未焼成廃棄物を水又は有機溶媒と混合して分散することによりスラリー状態としている。しかし、前述のように工程（B）の微細化とともに、又は工程（B）の微細化の代わりに、製造脱脂後の未焼成廃棄物を有機溶媒を用いてスラリー状態とした場合には、このスラリー状態となった製造脱脂後の未焼成廃棄物を工程（C）において磁性分離してもよい。つまり、工程（C）の磁性分離においてスラリー状態を生成する手間を省略することができる。

[0156] （1－2）水系溶媒によるスラリーの生成

上記では有機溶媒によりスラリーを生成しているが、水系溶媒を用いてスラリーを生成してもよい。分離回収方法は、共通の分離回収ルートとして、工程（A）の製造脱脂後の未焼成廃棄物の準備と、製造脱脂後の未焼成廃棄物の水系溶媒への混合（工程（B）の微細化（特に、粉碎による微細化）とともに、又は、工程（B）の微細化（特に、粉碎による微細化）の代わりに行われる）と、工程（C）の磁性分離と、をこの順序で含む。また、分離回収方法は、共通の分離回収ルートに引き続いて、希土類成分の分離回収ルートとして、工程（D）の希土類粉末含有物の溶解を含む。なお、希土類成分の分離回収ルートにおいて、追加的に、工程（F）のろ過、工程（G）の中和が行われてもよい。また、分離回収方法は、共通の分離回収ルートに引き続いて、金属成分の分離回収ルートとして、工程（H）の金属粉末含有物の溶解を含む。なお、金属成分の分離回収ルートとして、追加的に、工程（I）の各種処理が行われてもよい。

[0157] つまり、分離回収方法は、共通の分離回収ルートとして、例えば、工程（

A) の製造脱脂後の未焼成廃棄物の準備と、製造脱脂後の未焼成廃棄物の水系溶媒への混合によるスラリーの生成と、工程 (B) の微細化 (特に、粉碎による微細化) と、工程 (C) の磁性分離と、をこの順序で含む。この共通の分離回収ルートの順序を変更することにより、工程 (A) の製造脱脂後の未焼成廃棄物の準備と、工程 (B) の微細化 (特に、粉碎による微細化) と、粉碎により微細化された製造脱脂後の未焼成廃棄物の水系溶媒への混合によるスラリーの生成と、工程 (C) の磁性分離とがこの順序で行われることもできる。

あるいは、共通の分離回収ルートは、工程 (B) の微細化 (特に、粉碎による微細化) を省略することにより、例えば、工程 (A) の製造脱脂後の未焼成廃棄物の準備と、製造脱脂後の未焼成廃棄物の水系溶媒への混合によるスラリーの生成と、工程 (C) の磁性分離と、をこの順序で含む。

なお、水系溶媒としては、例えば水を用いることができる。

[0158] また、上記の第2の実施形態では、工程 (C) の磁性分離の際に、工程 (B) において微細化された後の製造脱脂後の未焼成廃棄物を水又は有機溶媒と混合して分散することによりスラリー状態としている。しかし、前述のように工程 (B) において製造脱脂後の未焼成廃棄物を水系溶媒を用いてスラリー状態とした場合には、このスラリー状態となった製造脱脂後の未焼成廃棄物を工程 (C) において磁性分離してもよい。つまり、工程 (C) の磁性分離においてスラリー状態を生成する手間を省略することができる。

[0159] (2) 製造脱脂後の未焼成廃棄物

上記の第2の実施の形態では、第1の実施の形態と同様に、積層セラミックコンデンサ10の製造方法には、(工程3)の積層ブロックの形成、(工程4)の積層チップへのカット、(工程5)の製造脱脂、(工程6)の積層チップの焼成、(工程7)の下地電極層用ペーストの塗布及び焼成が順に含まれている。しかし、積層セラミックコンデンサ10の製造方法はこれに限定されず、例えば、工程5の製造脱脂前であり、工程6の焼成(積層チップの焼成)前の未焼成の積層チップに対して下地電極層用ペーストを塗布した

後に製造脱脂、及び、焼成を行う場合がある。つまり、まず、工程5の製造脱脂前の積層チップに対して、Ni、ガラス成分、樹脂成分等を含む下地電極層用ペーストを塗布する。次に、下地電極層用ペーストが塗布された積層チップを製造脱脂し、さらにその後に焼成する。製造脱脂時の温度は、例えば、800℃より高く、1000℃以下であることが好ましい。焼成温度は、例えば、1000℃より高く、1400℃以下であることが好ましい。これらの工程は、上記の製造方法の工程4の積層チップへのカットの後であり工程8のめっき工程の前に行われる。そして、これらの工程では、上記の工程6の積層チップの焼成と工程7の下地電極層用ペーストの焼成とを一度の焼成で行っている。このような製造方法を考慮した場合には、製造脱脂後の未焼成廃棄物として、上記の実施の形態において挙げたものに加えて、下地電極層用ペーストが塗布された後の未焼成（工程6の焼成と工程7の焼成とが一度に行われる焼成前）である製造脱脂後の積層チップの廃棄物が含まれる。この場合、下地電極層用ペースト内のNi粉末が分離・回収の対象に含まれる。なお、下地電極層用ペーストの中に、セラミック粉末からなる共材が更に含まれていてもよい。

[0160] なお、以上のように、本発明の実施の形態は、前記記載で開示されているが、本発明は、これに限定されるものではない。

すなわち、本発明の技術的思想及び目的の範囲から逸脱することなく、以上説明した実施の形態に対し、機序、形状、材質、数量、位置又は配置等に関して、様々の変更を加えることができるものであり、それらは、本発明に含まれるものである。

[0161] <その他の変形例>

第1及び第2の実施の形態の両方に適用可能な変形例について以下に説明する。

（1）製造脱脂前の未焼成廃棄物又は製造脱脂後の未焼成廃棄物が排出されるその他の積層セラミックコンデンサ

上記の第1及び第2の実施の形態では、製造する積層セラミックコンデン

サとして、第1の外部電極30a及び第2の外部電極30bの2つの端子を有する2端子型積層セラミックコンデンサを説明した。しかし、本発明の適用範囲は、2端子型積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される製造脱脂前の未焼成廃棄物又は製造脱脂後の未焼成廃棄物に限定されない。本発明の適用対象は、Ni等の金属粉末を含む内部電極層と、BaTiO₃等の誘電体材料及びDy等の添加剤である希土類粉末を含むセラミック層と、を有する積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される製造脱脂前の未焼成廃棄物又は製造脱脂後の未焼成廃棄物である。よって、本発明は、例えば、3端子型積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される製造脱脂前の未焼成廃棄物又は製造脱脂後の未焼成廃棄物に適用されてもよい。

[0162] 例えば、3端子型積層セラミックコンデンサは、上記の第1及び第2の実施の形態と同様の積層体12と、第1～第4の外部電極と、を有する。内部電極層16は、第1の端面12e及び第2の端面12fに引き出される第1の内部電極層と、第1の側面12c及び第2の側面12dに引き出される第2の内部電極層と、を有する。積層体12の第1の端面12eには第1の外部電極が配置される。第1の外部電極は、積層体12の第1の端面12eにおいて露出している第1の内部電極層に電氣的に接続されている。積層体12の第2の端面12fには第2の外部電極が配置される。第2の外部電極は、積層体12の第2の端面12fにおいて露出している第1の内部電極層に電氣的に接続されている。積層体12の第1の側面12cには第3の外部電極が配置される。第3の外部電極は、積層体12の第1の側面12cにおいて露出している第2の内部電極層に電氣的に接続されている。積層体12の第2の側面12dには、第4の外部電極が配置される。第4の外部電極は、積層体12の第2の側面12dにおいて露出している第2の内部電極層に電氣的に接続されている。

[0163] (2) 工程(F)のろ過について

工程(D)において希土類粉末含有物を鉍酸に溶解すると、希土類粉末含

有物に含まれる第1のセラミック粉末は鉱酸と反応することにより未溶解物となり沈殿する。一方、希土類粉末は溶解して希土類成分含有溶液が生成される。この未溶解物を含む希土類成分含有溶液を希土類成分として回収することもできる。この場合、ろ過等の固液分離の工程（F）を省略可能である。

[0164] （3）工程（G）の中和の省略

上記の第1及び第2の実施の形態では、工程（D）希土類粉末含有物の溶解において、希土類成分は希土類成分含有溶液として分離回収することができる。よって、工程（G）の中和を省略可能である。

[0165] （4）工程（I）の各種処理の省略

上記の第1及び第2の実施の形態では、工程（H）の金属粉末含有物の溶解において、金属成分含有溶液は金属成分として分離回収することができる。よって、工程（I）の各種処理を省略可能である。

[0166] （5）希土類成分のその他の分離回収方法

上記の第1及び第2の実施の形態では、工程（G）の中和において $Dy(OH)_3$ 等の希土類成分化合物が希土類成分として分離回収される。しかし、希土類成分の分離回収はこれに限定されない。例えば、一例であるが、希土類成分は次のように回収することができる。

[0167] （a）

工程（G）の中和により得られた希土類成分化合物を熱処理して酸化物を生成することにより当該酸化物を希土類成分として回収することができる。

例えば、工程（G）の中和を経た後に得られる希土類成分化合物が $Dy(OH)_3$ である場合、 $Dy(OH)_3$ を熱処理することにより酸化ジスプロシウム（ Dy_2O_3 ）を希土類成分として回収することができる。

[0168] （b）

工程（G）の中和により得られた希土類成分化合物を塩酸に溶解して塩化物を生成することにより当該塩化物を希土類成分として回収することができる。

例えば、工程（G）の中和を経た後に得られる希土類成分化合物が $D_y(OH)_3$ である場合、 $D_y(OH)_3$ を塩酸に溶解することにより塩化ジスプロシウム（ D_yCl_3 ）溶液を生成する。塩化ジスプロシウム溶液を留去して溶媒を蒸発させることにより、塩化ジスプロシウム6水和物（ $D_yCl_3 \cdot 6H_2O$ ）を希土類成分として回収することができる。

[0169] (c)

また、前述の（b）と同様に工程（G）の中和を経た後に得られる希土類成分化合物である $D_y(OH)_3$ を塩酸に溶解することにより塩化ジスプロシウム溶液を生成する。その後、さらに精製することにより高純度の希土類成分を回収することができる。

例えば、前述のように生成された塩化ジスプロシウム溶液を溶媒抽出により精製し、高純度の塩化ジスプロシウム溶液を希土類成分として回収することができる。溶媒抽出とは、互いに混ざり合わない液体である油相及び水相の一方に溶解している溶質を他方へ移動させる、溶質の分配を利用した分離精製法である。溶媒抽出以外の方法としては、例えばイオン交換樹脂法等を用いることができる。

[0170] (d)

また、前述の（c）の溶媒抽出により得られた高純度の塩化ジスプロシウム溶液から高純度の酸化ジスプロシウム（ $D_y_2O_3$ ）を回収することができる。この場合、例えば、まず高純度の塩化ジスプロシウム溶液にシュウ酸を添加してシュウ酸ジスプロシウムを沈殿させる。これをろ過することにより、高純度のシュウ酸ジスプロシウム6水和物（ $D_y_2(C_2O_4)_3 \cdot 6H_2O$ ）を回収する。この高純度のシュウ酸ジスプロシウム6水和物を熱処理することにより、高純度の酸化ジスプロシウム（ $D_y_2O_3$ ）を希土類成分として回収することができる。

[0171] (e)

また、前述の（c）の溶媒抽出により得られた高純度の塩化ジスプロシウム溶液から高純度の塩化ジスプロシウム6水和物を回収することができる。

この場合、例えば、高純度の塩化ジスプロシウム溶液を留去して溶媒を蒸発させることにより高純度の塩化ジスプロシウム 6 水和物を回収する。

[0172] (f) 希土類成分の状態

回収した希土類成分の状態は、液体状態、固体状態、液体及び固体の混合状態のいずれであってもよい。また、希土類成分の結晶格子は、非晶質の状態、結晶質の状態、非晶質及び結晶質が混在した状態のいずれであってもよい。

[0173] (6) 金属成分のその他の分離回収方法

上記の第 1 及び第 2 の実施の形態では、工程 (H) の金属粉末含有物の溶解において金属粉末含有物を鉱酸に溶解している。そして、金属成分含有溶液を金属成分として分離回収している。また、続く工程 (I) の各種処理において、沈殿している第 2 のセラミック粉末を含む金属成分含有溶液をろ過することにより、第 2 のセラミック粉末が除去された金属成分含有溶液が金属成分として分離回収される。しかし、金属成分の分離回収はこれに限定されない。例えば、一例であるが、金属成分は次のように回収することができる。

[0174] (a)

金属成分含有溶液を晶析することにより金属成分化合物を金属成分として回収することができる。

例えば、工程 (H) の金属粉末含有物の溶解を経た後に得られる金属成分含有溶液が硫酸ニッケル (NiSO_4) 溶液である場合、硫酸ニッケル溶液を晶析させるとともにろ過することにより硫酸ニッケル六水和物 ($\text{NiSO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) を金属成分として回収することができる。

[0175] (b)

工程 (H) の金属粉末含有物の溶解を経た後に得られる金属成分含有溶液を精製することにより高純度の金属成分を回収することができる。

例えば、金属成分含有溶液である硫酸ニッケル (NiSO_4) 溶液をイオン交換樹脂法、溶媒抽出法等により精製し、高純度の硫酸ニッケル溶液を金属

成分として回収することができる。

[0176] (c)

前述の (b) で回収された高純度の硫酸ニッケル溶液を晶析させるとともにろ過することにより硫酸ニッケル六水和物 ($\text{NiSO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) を金属成分として回収することができる。

[0177] (d)

工程 (H) の金属粉末含有物の溶解を経た後に得られる金属成分含有溶液を前述の (b) とは異なる方法で精製することにより高純度の金属成分を回収することができる。

例えば、金属成分含有溶液である硫酸ニッケル溶液から、例えば電解析出法等の溶液から当該溶液に溶解している固体を析出させる方法により固体の高純度の Ni を析出させて金属成分として回収することができる。

[0178] (e)

前述の (d) で回収された高純度の Ni を処理することにより塩化ニッケル六水和物 ($\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) を金属成分として回収することができる。例えば、前述の (d) で回収された高純度の Ni を塩酸に溶解することにより高純度の塩化ニッケル (NiCl_2) 溶液を生成する。塩化ニッケル溶液を噴霧乾燥することにより、高純度の塩化ニッケル六水和物を生成する。さらに高純度の塩化ニッケル六水和物を熱風乾燥することによりさらに高純度の塩化ニッケル六水和物を金属成分として回収することができる。

[0179] (f)

工程 (H) の金属粉末含有物の溶解を経た後に得られる金属成分含有溶液を中和して塩化物を生成することにより当該塩化物を金属成分として回収することができる。

例えば、金属成分含有溶液である硫酸ニッケル溶液を水酸化ナトリウム、水酸化カリウムなどのアルカリにより例えば約 $\text{pH} 10$ ($\text{pH} 9$ 以上 $\text{pH} 11$ 以下) となるように調整して中和し、水酸化ニッケル ($\text{Ni}(\text{OH})_2$) を沈殿させる。沈殿した水酸化ニッケル ($\text{Ni}(\text{OH})_2$) は例えばろ過するこ

とにより分離回収される。さらに、水酸化ニッケルを塩酸に溶解することにより、塩化ニッケル (NiCl_2) 溶液を生成する。次に、塩化ニッケル溶液を留去して溶媒を蒸発させることにより、塩化ニッケル 6 水和物 ($\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) を金属成分として回収することができる。

[0180] (g) 金属成分の状態

回収した金属成分の状態は、液体状態、固体状態、液体及び固体の混合状態のいずれであってもよい。また、金属成分の結晶格子は、非晶質の状態、結晶質の状態、非晶質及び結晶質が混在した状態のいずれであってもよい。

[0181] <1>

(A) 積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成前であり製造脱脂前の未焼成廃棄物であって、磁性を有する金属粉末と、セラミック粉末と、希土類粉末と、樹脂成分と、を含み、前記金属粉末と前記セラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている製造脱脂前の未焼成廃棄物を準備する工程と、

(B) 前記製造脱脂前の未焼成廃棄物を、前記製造脱脂前の未焼成廃棄物と溶媒とを混合して生成したスラリーの中で微細化する工程と、

(C) 前記工程 (B) を経た後の前記製造脱脂前の未焼成廃棄物を、磁石を用いて、前記金属粉末及び前記セラミック粉末を含む金属粉末含有物と、前記希土類粉末及び前記セラミック粉末を含む希土類粉末含有物と、に分離して回収する工程と、

(D) 前記工程 (C) を経た後の前記希土類粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも 1 種の鉱酸に溶解することにより、前記希土類粉末含有物中の前記セラミック粉末を沈殿させるとともに前記希土類粉末含有物中の前記希土類粉末が希土類成分として溶解した希土類成分含有溶液を生成する工程と、

(H) 前記工程 (C) を経た後の前記金属粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも 1 種の鉱酸に溶解することにより、前記金属粉末含有物中の前記セラミック粉末を沈殿させるとともに前記金属粉末

含有物中の前記金属粉末が金属成分として溶解した金属成分含有溶液を生成する工程と、

を備える、製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[0182] <2>

(A) 積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成前であり製造脱脂前の未焼成廃棄物であって、磁性を有する金属粉末と、セラミック粉末と、希土類粉末と、樹脂成分と、を含み、前記金属粉末と前記セラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている製造脱脂前の未焼成廃棄物を準備する工程と、

(B) 前記製造脱脂前の未焼成廃棄物を微細化したものを溶媒と混合してスラリーを生成する工程と、

(C) 前記工程 (B) を経た後の前記製造脱脂前の未焼成廃棄物を、磁石を用いて、前記金属粉末及び前記セラミック粉末を含む金属粉末含有物と、前記希土類粉末及び前記セラミック粉末を含む希土類粉末含有物と、に分離して回収する工程と、

(D) 前記工程 (C) を経た後の前記希土類粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも 1 種の鉱酸に溶解することにより、前記希土類粉末含有物中の前記セラミック粉末を沈殿させるとともに前記希土類粉末含有物中の前記希土類粉末が希土類成分として溶解した希土類成分含有溶液を生成する工程と、

(H) 前記工程 (C) を経た後の前記金属粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも 1 種の鉱酸に溶解することにより、前記金属粉末含有物中の前記セラミック粉末を沈殿させるとともに前記金属粉末含有物中の前記金属粉末が金属成分として溶解した金属成分含有溶液を生成する工程と、

を備える、製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[0183] <3>

前記セラミック粉末は、第1のセラミック粉末と、前記第1のセラミック粉末よりも粒径の小さい第2のセラミック粉末と、含み、

前記金属粉末含有物において、前記金属粉末と前記第2のセラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っており、

前記希土類粉末含有物において、前記希土類粉末と前記第1のセラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている、<1>又は<2>に記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[0184] <4>

前記工程（B）における微細化は粉砕及び有機溶媒の投入の少なくともいずれかにより行われる、<1>又は<2>に記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[0185] <5>

前記工程（B）では、前記製造脱脂前の未焼成廃棄物から前記樹脂成分をリサイクル脱脂した後、前記リサイクル脱脂した後の前記製造脱脂前の未焼成廃棄物と前記溶媒としての水系溶媒とを混合して生成したスラリーの中で微細化する、<1>、<3>、<4>のいずれかに記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[0186] <6>

前記工程（B）では、前記製造脱脂前の未焼成廃棄物と前記溶媒としての有機溶媒とを混合して生成したスラリーの中で微細化する、<1>、<3>、<4>のいずれかに記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[0187] <7>

（E）前記工程（A）と前記工程（B）との間において前記製造脱脂前の未焼成廃棄物から前記樹脂成分をリサイクル脱脂するか、前記工程（B）と前記工程（C）との間において前記製造脱脂前の未焼成廃棄物から前記樹脂

成分をリサイクル脱脂するか、あるいは、前記工程（C）と前記工程（D）及び工程（H）との間において前記工程（C）を経た後の前記金属粉末含有物及び前記工程（C）を経た後の前記希土類粉末含有物それぞれから前記樹脂成分をリサイクル脱脂する工程をさらに備える、＜1＞乃至＜6＞のいずれかに記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[0188] ＜8＞

前記工程（E）においてリサイクル脱脂する際の脱脂温度は600℃以上1000℃以下である、＜7＞に記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[0189] ＜9＞

（F）沈殿している前記セラミック粉末を含む前記希土類成分含有溶液を固液分離する工程をさらに備える、＜1＞乃至＜8＞のいずれかに記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[0190] ＜10＞

（G）前記希土類成分含有溶液を中和することにより、前記希土類成分を沈殿させて回収する工程をさらに備える、＜1＞乃至＜9＞のいずれかに記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[0191] ＜11＞

前記工程（G）では、前記希土類成分含有溶液をpH6以上pH9以下に調整することにより前記希土類成分を回収する、＜10＞に記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[0192] ＜12＞

前記工程（D）では、前記鉱酸を添加することにより前記希土類成分含有溶液がpH1.5以上pH2.5以下となるように調整する、＜1＞乃至＜11＞のいずれかに記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[0193] < 1 3 >

前記金属成分はN iであり、前記セラミック粉末はB a T i O₃である、< 1 >乃至< 1 2 >のいずれかに記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[0194] < 1 4 >

前記希土類成分は、D y、S c、Y、L a、C e、P r、N d、P m、S m、E u、G d、T b、H o、E r、T m、Y b、L uのうち少なくとも1種である、< 1 >乃至< 1 3 >のいずれかに記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[0195] < 1 5 >

(A) 積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成前であり製造脱脂後の未焼成廃棄物であって、磁性を有する金属粉末と、セラミック粉末と、希土類粉末と、を含み、前記金属粉末と前記セラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っており、前記製造工程において樹脂成分が脱脂されている製造脱脂後の未焼成廃棄物を準備する工程と、

(B) 前記製造脱脂後の未焼成廃棄物を、前記製造脱脂後の未焼成廃棄物と溶媒とを混合して生成したスラリーの中で微細化する工程と、

(C) 前記工程 (B) を経た後の前記製造脱脂後の未焼成廃棄物を、磁石を用いて、前記金属粉末及び前記セラミック粉末を含む金属粉末含有物と、前記希土類粉末及び前記セラミック粉末を含む希土類粉末含有物と、に分離して回収する工程と、

(D) 前記工程 (C) を経た後の前記希土類粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも1種の鉱酸に溶解することにより、前記希土類粉末含有物中の前記セラミック粉末を沈殿させるとともに前記希土類粉末含有物中の前記希土類粉末が希土類成分として溶解した希土類成分含有溶液を生成する工程と、

(H) 前記工程 (C) を経た後の前記金属粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも1種の鉱酸に溶解することにより、前記

金属粉末含有物中の前記セラミック粉末を沈殿させるとともに前記金属粉末含有物中の前記金属粉末が金属成分として溶解した金属成分含有溶液を生成する工程と、

を備える、製造脱脂後の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[0196] < 1 6 >

(A) 積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成前であり製造脱脂後の未焼成廃棄物であって、磁性を有する金属粉末と、セラミック粉末と、希土類粉末と、を含み、前記金属粉末と前記セラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っており、前記製造工程において樹脂成分が脱脂されている製造脱脂後の未焼成廃棄物を準備する工程と、

(B) 前記製造脱脂後の未焼成廃棄物を微細化したものを溶媒と混合してスラリーを生成する工程と、

(C) 前記工程 (B) を経た後の前記製造脱脂後の未焼成廃棄物を、磁石を用いて、前記金属粉末及び前記セラミック粉末を含む金属粉末含有物と、前記希土類粉末及び前記セラミック粉末を含む希土類粉末含有物と、にて分離して回収する工程と、

(D) 前記工程 (C) を経た後の前記希土類粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも 1 種の鉱酸に溶解することにより、前記希土類粉末含有物中の前記セラミック粉末を沈殿させるとともに前記希土類粉末含有物中の前記希土類粉末が希土類成分として溶解した希土類成分含有溶液を生成する工程と、

(H) 前記工程 (C) を経た後の前記金属粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも 1 種の鉱酸に溶解することにより、前記金属粉末含有物中の前記セラミック粉末を沈殿させるとともに前記金属粉末含有物中の前記金属粉末が金属成分として溶解した金属成分含有溶液を生成する工程と、

を備える、製造脱脂後の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分

離回収方法。

符号の説明

[0197]	1 0	: 積層セラミックコンデンサ
	1 2	: 積層体
	1 2 a	: 第 1 の主面
	1 2 b	: 第 2 の主面
	1 2 c	: 第 1 の側面
	1 2 d	: 第 2 の側面
	1 2 e	: 第 1 の端面
	1 2 f	: 第 2 の端面
	1 4	: セラミック層
	1 4 __ U	: 未焼成時のセラミック層
	1 6	: 内部電極層
	1 6 __ U	: 未焼成時の内部電極層
	1 6 a	: 第 1 の内部電極層
	1 6 b	: 第 2 の内部電極層
	3 0	: 外部電極
	3 0 a	: 第 1 の外部電極
	3 0 b	: 第 2 の外部電極
	3 2	: 下地電極層
	3 2 a	: 第 1 の下地電極層
	3 2 b	: 第 2 の下地電極層
	3 4	: めっき層
	3 4 a	: 第 1 のめっき層
	3 4 b	: 第 2 のめっき層
	x	: 高さ方向
	y	: 幅方向
	z	: 長さ方向

請求の範囲

[請求項1]

(A) 積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成前であり製造脱脂前の未焼成廃棄物であって、磁性を有する金属粉末と、セラミック粉末と、希土類粉末と、樹脂成分と、を含み、前記金属粉末と前記セラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている製造脱脂前の未焼成廃棄物を準備する工程と、

(B) 前記製造脱脂前の未焼成廃棄物を、前記製造脱脂前の未焼成廃棄物と溶媒とを混合して生成したスラリーの中で微細化する工程と、

(C) 前記工程 (B) を経た後の前記製造脱脂前の未焼成廃棄物を、磁石を用いて、前記金属粉末及び前記セラミック粉末を含む金属粉末含有物と、前記希土類粉末及び前記セラミック粉末を含む希土類粉末含有物と、に分離して回収する工程と、

(D) 前記工程 (C) を経た後の前記希土類粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも1種の鉱酸に溶解することにより、前記希土類粉末含有物中の前記セラミック粉末を沈殿させるとともに前記希土類粉末含有物中の前記希土類粉末が希土類成分として溶解した希土類成分含有溶液を生成する工程と、

(H) 前記工程 (C) を経た後の前記金属粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも1種の鉱酸に溶解することにより、前記金属粉末含有物中の前記セラミック粉末を沈殿させるとともに前記金属粉末含有物中の前記金属粉末が金属成分として溶解した金属成分含有溶液を生成する工程と、

を備える、製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[請求項2]

(A) 積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成前であり製造脱脂前の未焼成廃棄物であって、磁性を有する金属粉末と、セラミック粉末と、希土類粉末と、樹脂成分と、を含み、前記

金属粉末と前記セラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている製造脱脂前の未焼成廃棄物を準備する工程と、

(B) 前記製造脱脂前の未焼成廃棄物を微細化したものを溶媒と混合してスラリーを生成する工程と、

(C) 前記工程 (B) を経た後の前記製造脱脂前の未焼成廃棄物を、磁石を用いて、前記金属粉末及び前記セラミック粉末を含む金属粉末含有物と、前記希土類粉末及び前記セラミック粉末を含む希土類粉末含有物と、に分離して回収する工程と、

(D) 前記工程 (C) を経た後の前記希土類粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも1種の鉱酸に溶解することにより、前記希土類粉末含有物中の前記セラミック粉末を沈殿させるとともに前記希土類粉末含有物中の前記希土類粉末が希土類成分として溶解した希土類成分含有溶液を生成する工程と、

(H) 前記工程 (C) を経た後の前記金属粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも1種の鉱酸に溶解することにより、前記金属粉末含有物中の前記セラミック粉末を沈殿させるとともに前記金属粉末含有物中の前記金属粉末が金属成分として溶解した金属成分含有溶液を生成する工程と、

を備える、製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[請求項3]

前記セラミック粉末は、第1のセラミック粉末と、前記第1のセラミック粉末よりも粒径の小さい第2のセラミック粉末と、を含み、

前記金属粉末含有物において、前記金属粉末と前記第2のセラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っており、

前記希土類粉末含有物において、前記希土類粉末と前記第1のセラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っている、請求項1又は2に記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

- [請求項4] 前記工程（B）における微細化は粉碎及び有機溶媒の投入の少なくともいずれかにより行われる、請求項1又は2に記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。
- [請求項5] 前記工程（B）では、前記製造脱脂前の未焼成廃棄物から前記樹脂成分をリサイクル脱脂した後、前記リサイクル脱脂した後の前記製造脱脂前の未焼成廃棄物と前記溶媒としての水系溶媒とを混合して生成したスラリーの中で微細化する、請求項1、3、4のいずれかに記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。
- [請求項6] 前記工程（B）では、前記製造脱脂前の未焼成廃棄物と前記溶媒としての有機溶媒とを混合して生成したスラリーの中で微細化する、請求項1、3、4のいずれかに記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。
- [請求項7] （E）前記工程（A）と前記工程（B）との間において前記製造脱脂前の未焼成廃棄物から前記樹脂成分をリサイクル脱脂するか、前記工程（B）と前記工程（C）との間において前記製造脱脂前の未焼成廃棄物から前記樹脂成分をリサイクル脱脂するか、あるいは、前記工程（C）と前記工程（D）及び工程（H）との間において前記工程（C）を経た後の前記金属粉末含有物及び前記工程（C）を経た後の前記希土類粉末含有物それぞれから前記樹脂成分をリサイクル脱脂する工程をさらに備える、請求項1乃至6のいずれかに記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。
- [請求項8] 前記工程（E）においてリサイクル脱脂する際の脱脂温度は600℃以上1000℃以下である、請求項7に記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。
- [請求項9] （F）沈殿している前記セラミック粉末を含む前記希土類成分含有溶液を固液分離する工程をさらに備える、請求項1乃至8のいずれかに記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の

分離回収方法。

[請求項10] (G) 前記希土類成分含有溶液を中和することにより、前記希土類成分を沈殿させて回収する工程をさらに備える、請求項1乃至9のいずれかに記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[請求項11] 前記工程(G)では、前記希土類成分含有溶液をpH6以上pH9以下に調整することにより前記希土類成分を回収する、請求項10に記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[請求項12] 前記工程(D)では、前記鉱酸を添加することにより前記希土類成分含有溶液がpH1.5以上pH2.5以下となるように調整する、請求項1乃至11のいずれかに記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[請求項13] 前記金属成分はNiであり、前記セラミック粉末はBaTiO₃である、請求項1乃至12のいずれかに記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[請求項14] 前記希土類成分は、Dy、Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Ho、Er、Tm、Yb、Luのうち少なくとも1種である、請求項1乃至13のいずれかに記載の製造脱脂前の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[請求項15] (A) 積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成前であり製造脱脂後の未焼成廃棄物であって、磁性を有する金属粉末と、セラミック粉末と、希土類粉末と、を含み、前記金属粉末と前記セラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っており、前記製造工程において樹脂成分が脱脂されている製造脱脂後の未焼成廃棄物を準備する工程と、

(B) 前記製造脱脂後の未焼成廃棄物を、前記製造脱脂後の未焼成廃棄物と溶媒とを混合して生成したスラリーの中で微細化する工程と

、

(C) 前記工程 (B) を経た後の前記製造脱脂後の未焼成廃棄物を、磁石を用いて、前記金属粉末及び前記セラミック粉末を含む金属粉末含有物と、前記希土類粉末及び前記セラミック粉末を含む希土類粉末含有物と、に分離して回収する工程と、

(D) 前記工程 (C) を経た後の前記希土類粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも1種の鉱酸に溶解することにより、前記希土類粉末含有物中の前記セラミック粉末を沈殿させるとともに前記希土類粉末含有物中の前記希土類粉末が希土類成分として溶解した希土類成分含有溶液を生成する工程と、

(H) 前記工程 (C) を経た後の前記金属粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも1種の鉱酸に溶解することにより、前記金属粉末含有物中の前記セラミック粉末を沈殿させるとともに前記金属粉末含有物中の前記金属粉末が金属成分として溶解した金属成分含有溶液を生成する工程と、

を備える、製造脱脂後の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

[請求項16]

(A) 積層セラミックコンデンサの製造工程において排出される焼成前であり製造脱脂後の未焼成廃棄物であって、磁性を有する金属粉末と、セラミック粉末と、希土類粉末と、を含み、前記金属粉末と前記セラミック粉末とが少なくとも部分的に互いに付着し合っており、前記製造工程において樹脂成分が脱脂されている製造脱脂後の未焼成廃棄物を準備する工程と、

(B) 前記製造脱脂後の未焼成廃棄物を微細化したものを溶媒と混合してスラリーを生成する工程と、

(C) 前記工程 (B) を経た後の前記製造脱脂後の未焼成廃棄物を、磁石を用いて、前記金属粉末及び前記セラミック粉末を含む金属粉末含有物と、前記希土類粉末及び前記セラミック粉末を含む希土類粉

末含有物と、にて分離して回収する工程と、

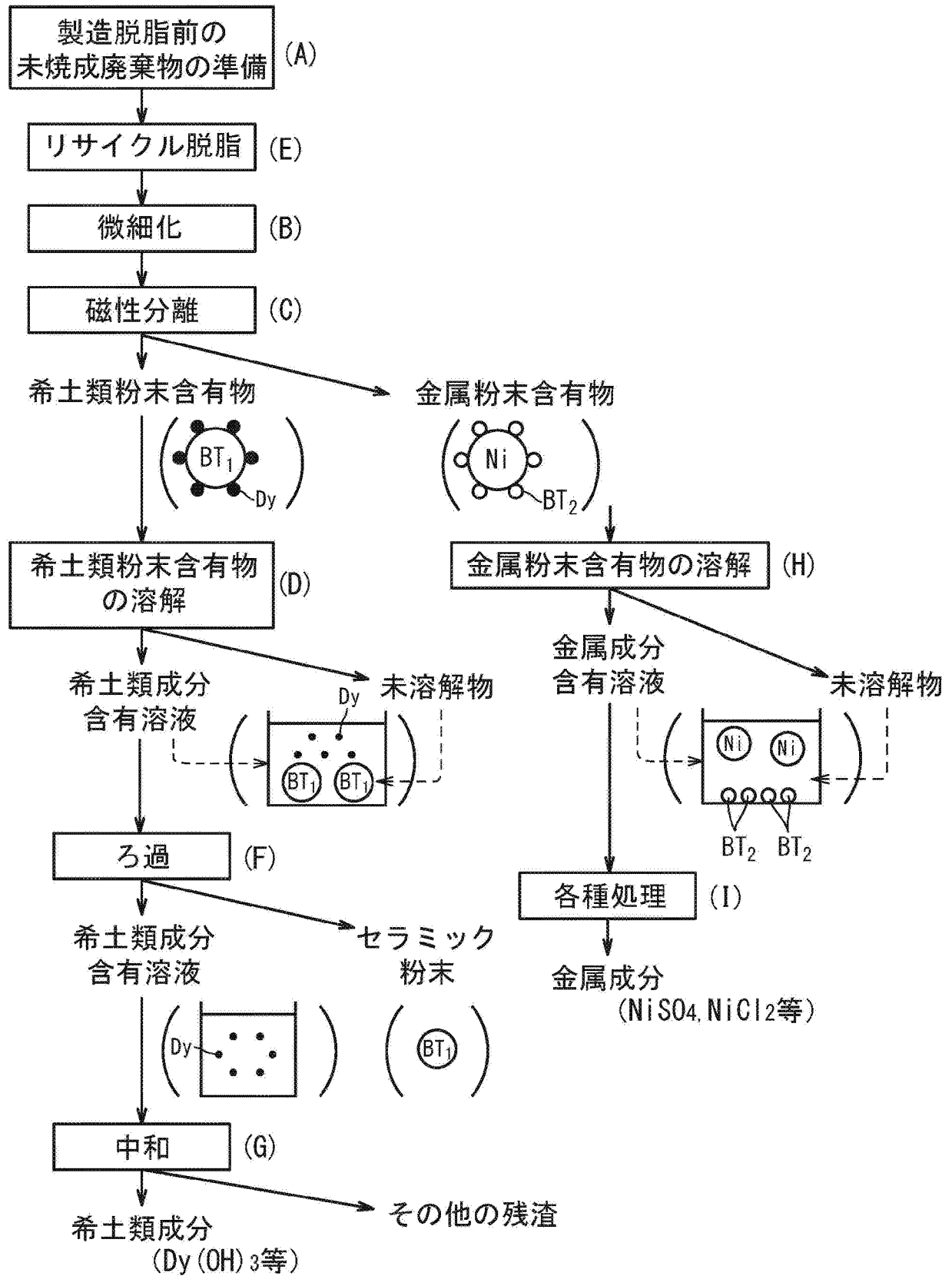
(D) 前記工程 (C) を経た後の前記希土類粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも 1 種の鉱酸に溶解することにより、前記希土類粉末含有物中の前記セラミック粉末を沈殿させるとともに前記希土類粉末含有物中の前記希土類粉末が希土類成分として溶解した希土類成分含有溶液を生成する工程と、

(H) 前記工程 (C) を経た後の前記金属粉末含有物を硫酸、硝酸及び塩酸を含む群から選ばれる少なくとも 1 種の鉱酸に溶解することにより、前記金属粉末含有物中の前記セラミック粉末を沈殿させるとともに前記金属粉末含有物中の前記金属粉末が金属成分として溶解した金属成分含有溶液を生成する工程と、

を備える、製造脱脂後の未焼成廃棄物からの希土類成分及び金属成分の分離回収方法。

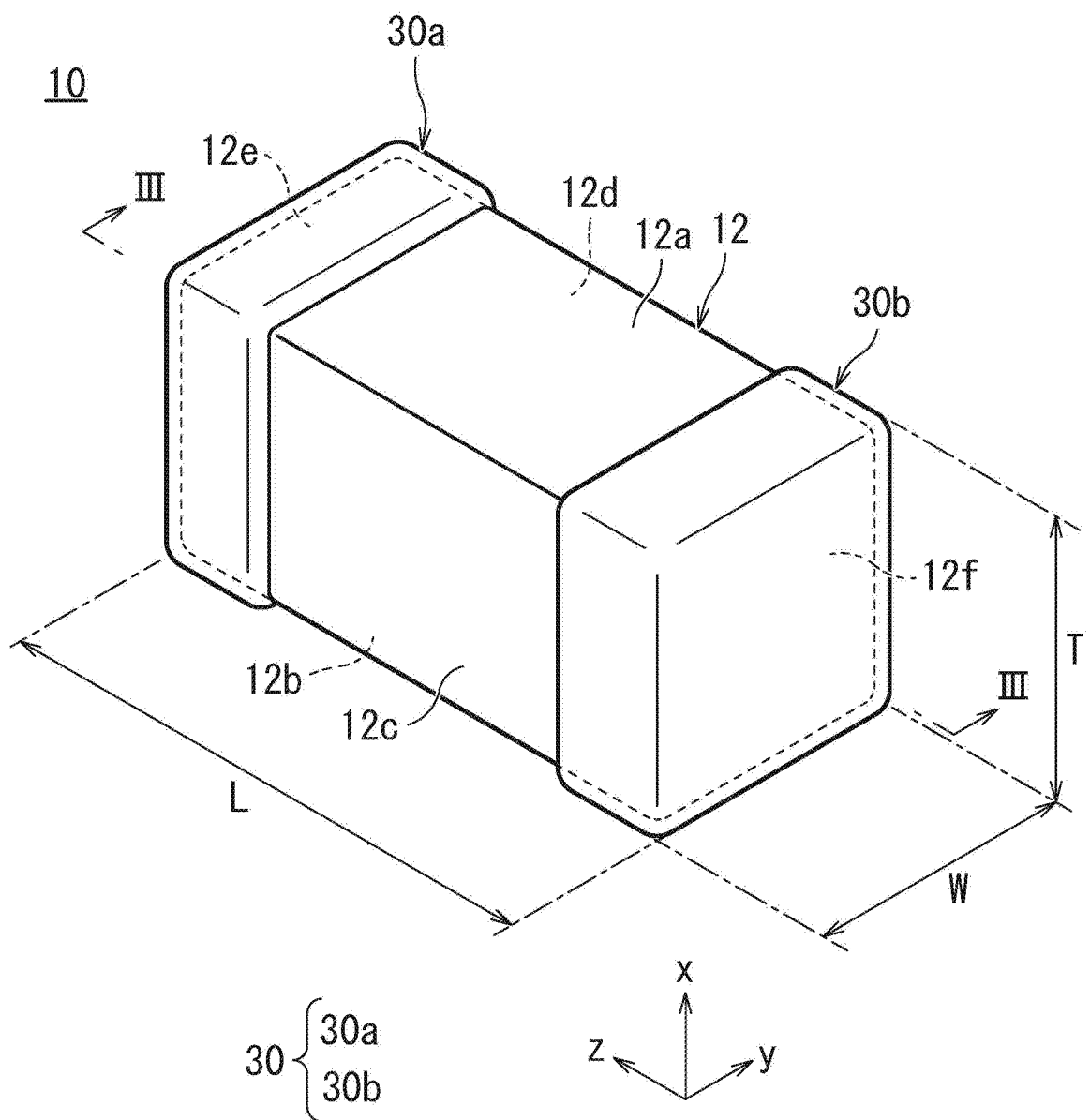
[図1]

図 1

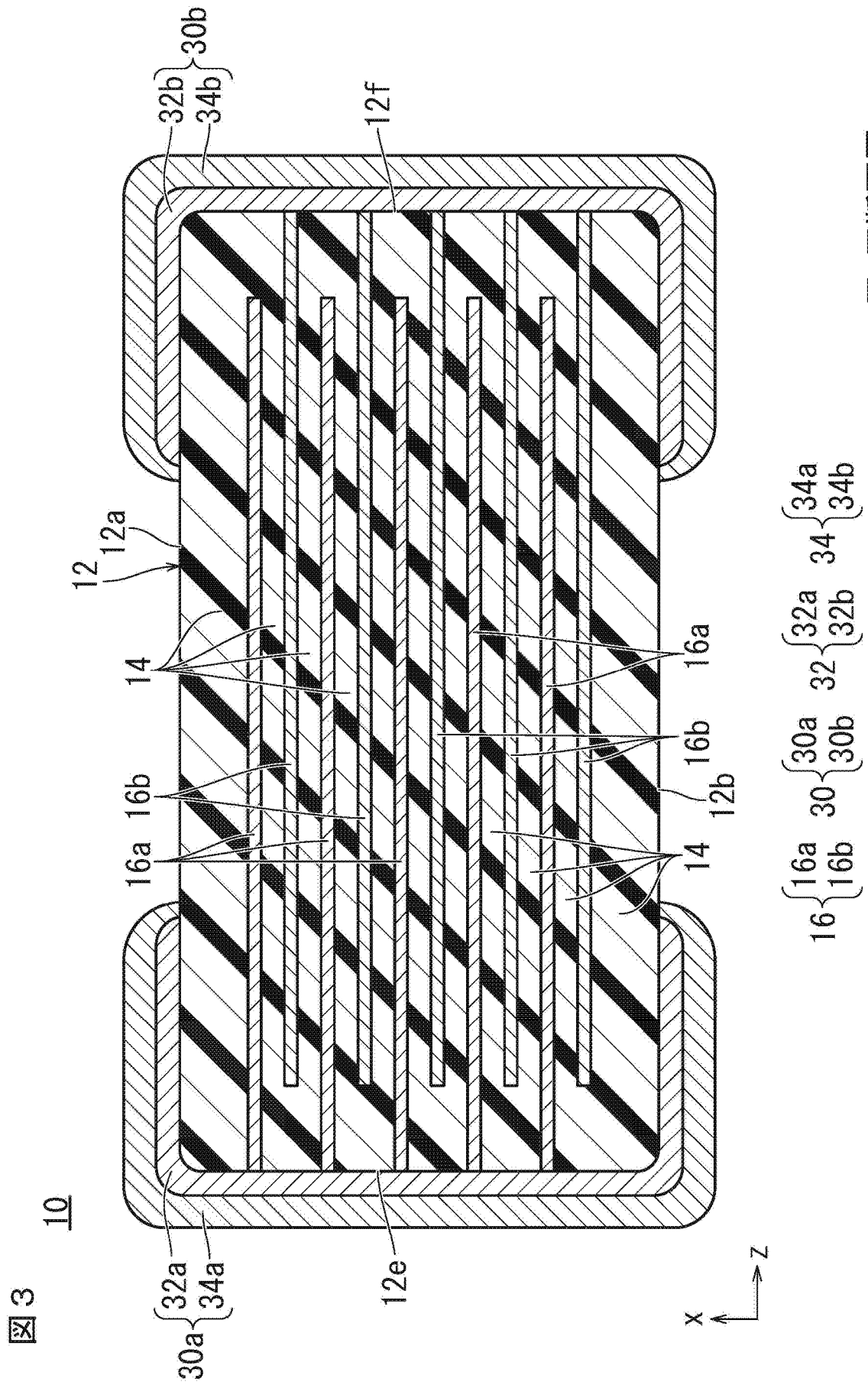


[図2]

図 2

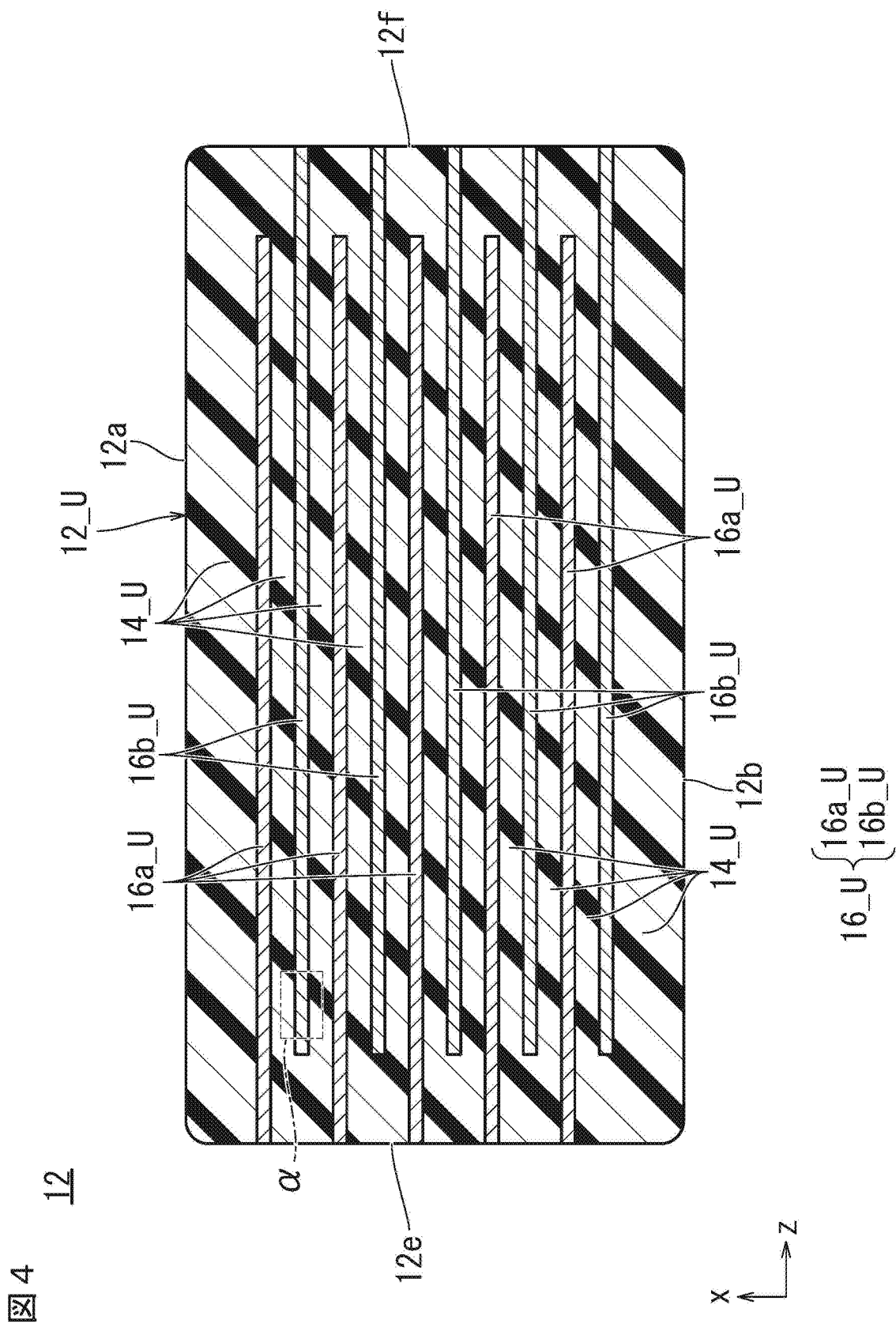


[図3]



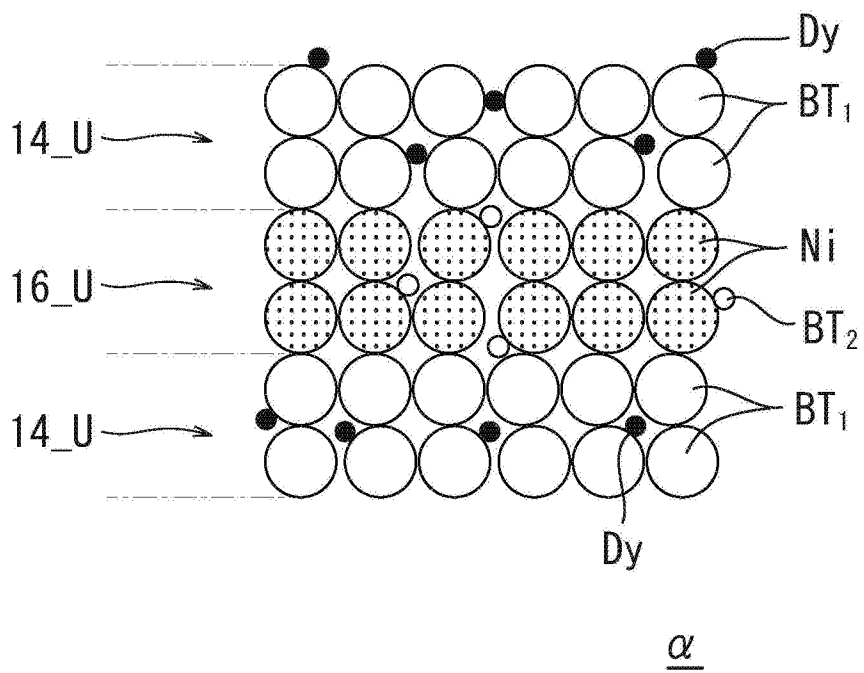
III-III断面図

[図4]



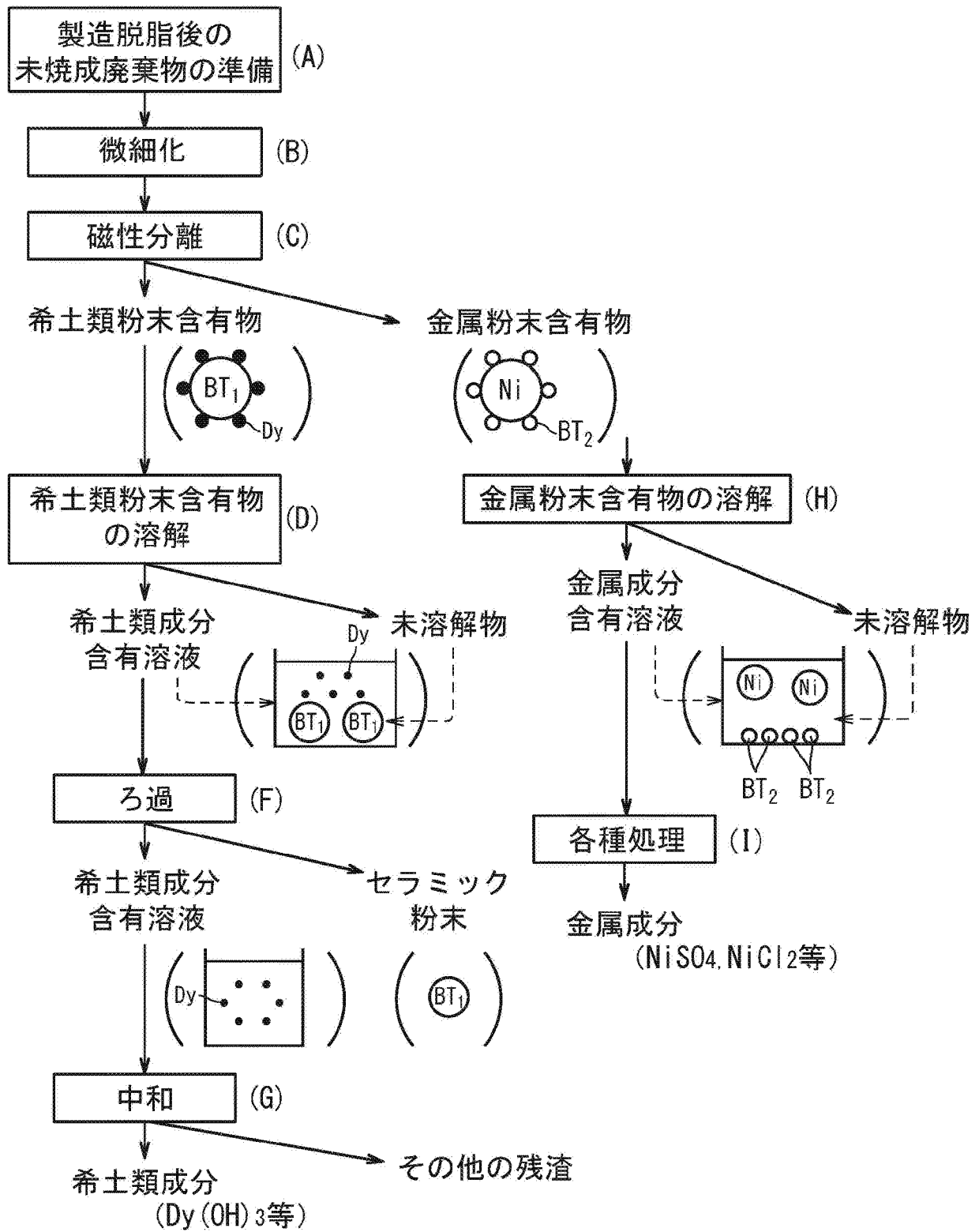
[図5]

図 5



[図6]

図 6



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/000872

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER <i>C22B 59/00</i> (2006.01)i; <i>C22B 1/00</i> (2006.01)i; <i>C22B 3/06</i> (2006.01)i; <i>C22B 7/00</i> (2006.01)i; <i>C22B 23/00</i> (2006.01)i FI: C22B59/00; C22B1/00 601; C22B3/06; C22B7/00 G; C22B23/00 102 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) C22B59/00; C22B1/00; C22B3/06; C22B7/00; C22B23/00 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2024 Registered utility model specifications of Japan 1996-2024 Published registered utility model applications of Japan 1994-2024 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	CN 115772599 A (JIANGXI SHANNING TECHNOLOGY CO., LTD.) 10 March 2023 (2023-03-10) entire text	1-16
A	CN 111039495 A (HUNAN JINGYIXIANGTAI HIGH-TECH ENVIRONMENTAL PROTECTION DEVELOPMENT CO., LTD.) 21 April 2020 (2020-04-21) entire text	1-16
☐ 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 “D” document cited by the applicant in the international application “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 01 March 2024		Date of mailing of the international search report 12 March 2024
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/000872

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
CN	115772599	A	10 March 2023	(Family: none)	
CN	111039495	A	21 April 2020	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））
C22B 59/00(2006.01)i; C22B 1/00(2006.01)i; C22B 3/06(2006.01)i; C22B 7/00(2006.01)i;
C22B 23/00(2006.01)i
FI: C22B59/00; C22B1/00 601; C22B3/06; C22B7/00 G; C22B23/00 102

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））
C22B59/00; C22B1/00; C22B3/06; C22B7/00; C22B23/00

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 1922-1996年
日本国公開実用新案公報 1971-2024年
日本国実用新案登録公報 1996-2024年
日本国登録実用新案公報 1994-2024年

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）

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 請求項の番号
A	CN 115772599 A (JIANGXI SHANNING TECHNOLOGY CO., LTD.) 10.03.2023 (2023 - 03 - 10) 全文	1-16
A	CN 111039495 A (HUNAN JINGYIXIANGTAI HIGH-TECH ENVIRONMENTAL PROTECTION DEVELOPMENT CO., LTD.) 21.04.2020 (2020 - 04 - 21) 全文	1-16

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☒ 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、一般的技术水準を示すもの
“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献
“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の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抵触するものではなく、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
01.03.2024

国際調査報告の発送日
12.03.2024

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

権限のある職員（特許庁審査官）
岡田 隆介 4E 3442
電話番号 03-3581-1101 内線 3425

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2024/000872

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
CN	115772599	A	10.03.2023	(ファミリーなし)	
CN	111039495	A	21.04.2020	(ファミリーなし)	