

**(12) BELGISCHE OCTROOIAANVRAAG**

(41) Publicatiedatum : 25/04/2022

(21) Aanvraagnummer : BE2021/5184

(22) Indieningsdatum : 11/03/2021

(62) Afsplitst van basisaanvraag :

(62) Indieningsdatum basisaanvraag :

(51) Internationale classificatie : C07C 4/22, C07C 15/46, C07C 15/06, C07C 15/073, C07C 15/085, C07C 15/44, C08J 11/12, C10G 9/00, C10G 1/00, C10G 1/10, C07C 4/04

(30) Voorranggegevens :

13/03/2020 EP 20163188.4

(71) Aanvrager(s) :

**INDAVER**  
NV  
9130 , KALLO  
België

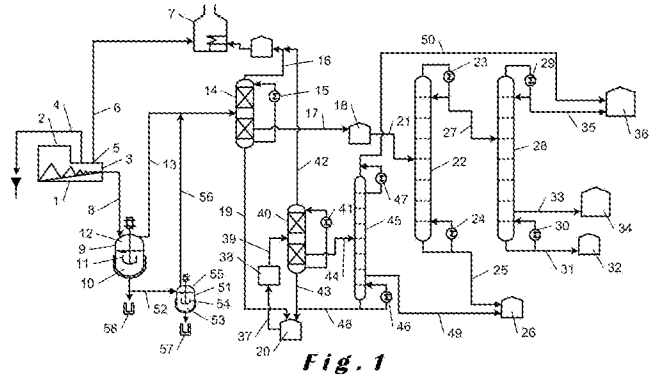
(72) Uitvinder(s) :

**ALDERWEIRELDT Nick**  
2970 ZOERSEL  
België

**KRESOVIC Uros**  
3111 WEZEMAAL  
België

**(54) Werkwijze voor het recupereren van styreenmonomeer uit een styreenhoudend polymeer**

(57)De onderhavige uitvinding betreft een werkwijze voor het recupereren van ten minste styreenmonomeer en andere vloeibare pyrolyseproducten van polystyreen met laag molecuulair gewicht uit een kunststofmateriaal dat polystyreen bevat. Het kunststofmateriaal wordt gedeeltelijk gekraakt in een eerste pyrolyse reactor (9) op een eerste temperatuur en bij een eerste gasdruk. Het gasvormige product dat wordt geproduceerd in de eerste pyrolyse reactor (9) wordt gescheiden in een eerste lichtere fractie die styreenmonomeer bevat en in een eerste zwaardere fractie die styreenoligomeren bevat. De zwaardere fractie wordt toegevoerd naar een tweede pyrolyse reactor (38) waarbij de styreenoligomeren verder worden gekraakt op een tweede temperatuur, bij een tweede gasdruk die hoger is dan de eerste gasdruk in de eerste pyrolyse reactor. Een dergelijke pyrolysewerkwijze in twee stappen maakt het mogelijk om een grotere hoeveelheid van de vloeibare pyrolyseproducten van polystyreen met laag molecuulair gewicht te recupereren, waaronder styreenmonomeer en andere vloeibare producten met laag molecuulair gewicht zoals alfa-methylstyreen, cumeen, ethylbenzeen en toluen.



**"Werkwijze voor het recupereren van styreenmonomeer uit een styreenhoudend polymeer"**

De onderhavige uitvinding betreft een werkwijze voor het recupereren van ten minste styreenmonomeer uit een kunststofmateriaal dat ten minste één styreenhoudend polymeer bevat. Het kunststofmateriaal is in het bijzonder een afvalmateriaal, meer in het bijzonder een consumptieafvalmateriaal dat afkomstig is van huis-aan-huisvuilnisophaling.

Afvalmaterialen, zoals vast huishoudelijk afval, bevatten een relatief grote fractie aan polymere materialen, met inbegrip van polystyreenmaterialen. Die polystyreenmaterialen worden vaak als vulgrond gestort, of verbrand voor de recuperatie van energie. Het recycleren van materialen wordt echter steeds belangrijker. Het recupereren van secundaire materialen verdient de voorkeur boven verbranden of storten als vulgrond.

Daarom is onderzoek gevoerd naar de haalbaarheid van een chemische recyclage van polystyreenafvalmaterialen. Polystyreenhoudende polymeren kunnen immers worden onderworpen aan pyrolyse, in het bijzonder met het oog op het verkrijgen van styreenmonomeer. Pyrolyse is een werkwijze waarbij het polymeermateriaal wordt afgebroken onder niet-oxiderende omstandigheden onder invloed van warmte. De pyrolysereactie wordt doorgaans niet gekatalyseerd, maar er kan een katalysator worden gebruikt, zoals bijvoorbeeld is bekendgemaakt in EP 0 649 827.

De pyrolyse van polystyreen kan gassen, vloeistoffen en een vast residu voortbrengen. De gassen omvatten in het bijzonder waterstof, methaan, ethaan, ethyleen, propaan, propyleen, butaan, isobutaan en buteen, terwijl vloeistoffen in het bijzonder alfa-methylstyreen, styreen, ethylbenzeen en toluen omvatten. Het vaste residu omvat hoofdzakelijk koolresidu. Van deze producten zijn de vloeistoffen met laag moleculair

gewicht, en in het bijzonder styreenmonomeer, het meest waardevol. Styreenmonomeer kan immers opnieuw worden gebruikt om polystyreen te produceren. De gassen zijn minder waardevol en worden doorgaans enkel opnieuw gebruikt als bron van energie voor het recyclageproces.

5                   In zijn artikel "*Chemical Recycling of Household Polymeric Wastes*" (<http://dx.doi.org/10.5772/65667>) beschrijft A. Karaduman een mogelijke pyrolysewerkwijze voor de chemische recyclage van polystyreenafvalmaterialen. Pyrolyse werd uitgevoerd in een stikstofatmosfeer bij atmosferische druk en bij een temperatuur van 450°C.

10 De totale omzetting bedroeg slechts 92,92%; er werd 59,46% vloeistof en 43,46% gas geproduceerd. De vloeistof zelf bevatte slechts 55,52% styreenmonomeer.

Teneinde de opbrengst aan styreenmonomeer te verhogen openbaart DE 199 28 645 om de pyrolyse van het polystyreenmateriaal uit

15 te voeren bij een verlaagde druk tussen 20 en 100 torr (tussen 0,027 en 0,133 bar) en bij een verhoogde temperatuur tussen 600 en 800°C. Als gevolg van die lagere druk- en hogere temperaturomstandigheden kon een hogere opbrengst aan styreen worden bereikt. In Voorbeelden 2 en 4 werd een opbrengst aan styreen van respectievelijk 70 en 68% bereikt in

20 combinatie met een kleine hoeveelheid gassen (minder dan 1%). Het vloeibare product bevatte echter een aanzienlijke hoeveelheid styreenoligomeren (di- en trimeren), die door destillatie moesten worden verwijderd aangezien ze niet opnieuw kunnen worden gebruikt bij de productie van polystyreen. De styreenoligomeren waren daarom van

25 weinig waarde, en ze werden in DE 199 28 645 gebruikt als brandstof om de pyrolyse reactor te verwarmen.

Een soortgelijke werkwijze wordt bekendgemaakt in JP2003267896. Deze werkwijze omvat echter twee pyrolysestappen. In de eerste stap wordt het polystyreenmateriaal aan pyrolyse onderworpen, in

30 een eerste reactor, bij een verlaagde druk, in het bijzonder bij een druk van

0,066 bar, en bij een temperatuur van 700°C. Vanwege de lage druk in deze eerste reactor wordt slechts een relatief kleine hoeveelheid verbindingen geproduceerd die een lager kookpunt hebben dan styreen, zoals toluen, namelijk slechts ongeveer 3 tot 5%. Die verbindingen met laag kookpunt worden afgevoerd door middel van een eerste destillatiekolom. In een tweede destillatiekolom wordt het pyrolyseproduct verder gescheiden in een styreenmonomeerfractie en in een zware olie. Een gedeelte van die zware olie wordt gebruikt als brandstof. Teneinde meer styreenmonomeer te recupereren wordt een ander gedeelte van de zware olie opnieuw gekraakt, in een tweede stap, door dat gedeelte van de zware olie naar de eerste of naar een tweede reactor te recirculeren. Die tweede reactor wordt eveneens bedreven bij een temperatuur van 700°C, maar bij een hogere druk, namelijk bij normale druk, teneinde meer styreenmonomeer te recupereren. De opbrengst aan styreenmonomeer kon op die manier worden verhoogd van 80 naar 85%.

In JP2003267896 wordt geen melding gemaakt van koolresidu dat wordt geproduceerd in de eerste reactor. Gezien de hoge opbrengsten aan styreenmonomeer is blijkbaar zuiver polystyreenafvalmateriaal gebruikt als kunststofmateriaal. Dergelijk zuiver polystyreenafvalmateriaal levert slechts een kleine hoeveelheid koolresidu op. De onderhavige uitvinders hebben geconstateerd dat voor polystyreenafvalmaterialen die veel verontreinigingen bevatten, zoals in het bijzonder consumptiepolystyreenafvalmateriaal dat afkomstig is van huis-aan-huisvuilnisophaling, de werkwijze die wordt bekendgemaakt in JP2003267896 minder geschikt is, aangezien ze een grote hoeveelheid koolresidu produceert tijdens de pyrolyse van het verontreinigde afvalmateriaal.

In de werkwijze die wordt bekendgemaakt in WO 2018/224482 zijn de reactieomstandigheden die worden toegepast tijdens de pyrolyse reactie zodanig gekozen dat een kleinere hoeveelheid

styreenmonomeer wordt verkregen in combinatie met een relatief grote hoeveelheid styreenoligomeren. Die oligomeren worden gescheiden van het styreenmonomeer door een destillatiewerkwijze. Ze worden daarna verder gekraakt in een stoomkraakinstallatie om ethyleen en propyleen te produceren. Een nadeel van deze werkwijze is dat ethyleen en propyleen minder waardevol zijn dan styreenmonomeer. Bovendien dient de installatie die voor deze werkwijze nodig is twee verschillende secties te omvatten, namelijk een eerste sectie voor het produceren van het ruwe styreenproduct en om dat ruwe product te scheiden in de verschillende pyrolyseproducten en een tweede sectie om het stoomkraken van de styreenoligomeerfractie uit te voeren en om de verschillende gassen die daardoor worden geproduceerd te scheiden.

Een doel van de onderhavige uitvinding is nu een nieuwe werkwijze in twee stappen te verschaffen voor het recupereren van styreenmonomeer en andere vloeibare pyrolyseproducten van polystyreen met laag moleculair gewicht uit een kunststofmateriaal dat ten minste één styreenhoudend polymeer bevat, waarbij die werkwijze het mogelijk maakt om tijdens de tweede stap meer van de styreenoligomeren te kraken om de hoeveelheid van de vloeibare pyrolyseproducten van polystyreen met laag moleculair gewicht te verhogen, met inbegrip van styreenmonomeer en andere vloeibare producten met laag moleculair gewicht zoals alfa-methylstyreen, cumeen, ethylbenzeen en toluen, die worden gerecupereerd.

De werkwijze volgens de onderhavige uitvinding omvat de volgende stappen:

- het verwarmen van het kunststofmateriaal in een eerste pyrolyse reactor tot een eerste temperatuur waarop het kunststofmateriaal zich in gesmolten toestand bevindt;
- het kraken van het genoemde styreenhoudende polymeer op de genoemde eerste temperatuur, bij een eerste gasdruk, in de

- 5 genoemde eerste pyrolysereactor om een eerste product te produceren dat styreenmonomeer en styreenoligomeren bevat en dat gasvormig is bij de genoemde eerste temperatuur en de genoemde eerste gasdruk, waarbij het genoemde eerste product een eerste gasfase vormt in de eerste pyrolysereactor en het gesmolten kunststofmateriaal dat daarin wordt gekraakt een eerste vloeibare fase;
- 10 - het verwijderen van het eerste product tijdens de productie ervan uit de eerste pyrolysereactor in het bijzonder om de eerste pyrolysereactor op de genoemde eerste gasdruk te houden;
  - 15 - het scheiden van het eerste product dat is verwijderd uit de genoemde eerste pyrolysereactor in een eerste lichtere fractie, die ten minste een deel van het genoemde styreenmonomeer bevat, en in een eerste zwaardere fractie, die ten minste een deel van de genoemde styreenoligomeren bevat; en
  - 20 - het aanvoeren van de genoemde eerste zwaardere fractie naar een tweede pyrolysereactor waarin de genoemde styreenoligomeren worden gekraakt op een tweede temperatuur, bij een tweede gasdruk die hoger is dan de genoemde eerste gasdruk, om een tweede product te produceren dat alfa-methylstyreen, cumeen, styreenmonomeer, ethylbenzeen en/of toluen bevat en dat gasvormig is bij de genoemde tweede gasdruk en de genoemde tweede temperatuur, waarbij het tweede product wordt verwijderd uit de tweede pyrolysereactor tijdens de productie ervan.

25 Een dergelijke werkwijze wordt bekendgemaakt in JP2003267896. De werkwijze volgens de onderhavige uitvinding wordt echter gekenmerkt doordat de genoemde eerste gasdruk lager is dan 1,0 bara, de genoemde tweede gasdruk hoger is dan 1,0 bara en de genoemde tweede temperatuur lager is dan 650°C.

In overeenstemming met de onderhavige uitvinding is vastgesteld dat de styreenoligomeren die worden verwijderd uit het eerste product dat wordt geproduceerd in de eerste pyrolyse reactor, in de tweede pyrolyse reactor kunnen worden omgezet naar één of meer van de

5 vloeibare pyrolyseproducten van polystyreen met laag moleculair gewicht. Die vloeibare pyrolyseproducten van polystyreen met laag moleculair gewicht hebben een normaal kookpunt van ten minste 80°C, waarbij dat normale kookpunt in het bijzonder lager is dan 240°C, en een moleculair gewicht dat lager is dan het moleculaire gewicht van styreendimeer. Ze

10 omvatten in het bijzonder alfa-methylstyreen, cumeen, styreenmonomeer, ethylbenzeen en toluen. Door de tweede pyrolyse stap uit te voeren in een afzonderlijke, tweede pyrolyse reactor, kunnen de pyrolyseomstandigheden worden geoptimaliseerd in de eerste pyrolyse reactor, in het bijzonder om de opbrengst aan styreenmonomeer

15 te verhogen en/of om de hoeveelheid vast residu dat wordt gevormd in de eerste pyrolyse reactor te verlagen, terwijl de pyrolyseomstandigheden in de tweede pyrolyse reactor in het bijzonder kunnen worden geoptimaliseerd om een hoge omzetting te verwezenlijken van de styreenoligomeren naar één of meer van de vloeibare pyrolyseproducten

20 van polystyreen met laag moleculair gewicht. In het algemeen zal de eerste pyrolyse reactor worden bedreven bij een lagere druk dan de tweede pyrolyse reactor, namelijk bij een gasdruk die lager is dan 1,0 bara, terwijl de tweede pyrolyse reactor wordt bedreven bij een gasdruk die hoger is dan 1,0 bara. In de werkwijze volgens de onderhavige uitvinding kan een

25 lagere gasdruk, in het bijzonder een vacuüm (d.w.z. een druk van minder dan 1,0 bara), worden gebruikt in de eerste pyrolyse reactor, aangezien de styreenoligomeren die in grotere hoeveelheden worden geproduceerd onder omstandigheden van lagere druk, vervolgens worden omgezet naar één of meer van de vloeibare pyrolyseproducten met laag moleculair

30 gewicht in de tweede pyrolyse reactor. De tweede temperatuur in die



tweede reactor dient lager te zijn dan 650°C, of zelfs nog lager. Er is immers gebleken dat de oligomeren grondig moeten worden behandeld om zoveel mogelijk van de pyrolyseproducten met laag moleculair gewicht te produceren. Dat kan worden bereikt door de relatief lage  
5 pyrolysetemperatuur, in combinatie met de hogere gasdruk om de oligomeren voldoende lang in de vloeibare fase van de tweede pyrolyse reactor te houden.

Ondanks de andere werkomstandigheden, in het bijzonder de andere gasdruk, die in de eerste pyrolyse reactor worden toegepast,  
10 worden in de eerste pyrolyse reactor ook de andere vloeibare pyrolyseproducten met laag moleculair gewicht dan styreenmonomeer geproduceerd, zij het dan in kleinere hoeveelheden. Er is dus een soortgelijke scheidingswerkwijze nodig voor het scheiden van de vloeibare pyrolyseproducten van polystyreen met laag moleculair gewicht die  
15 aanwezig zijn in het eerste product dat wordt geproduceerd in de eerste pyrolyse reactor en de vloeibare pyrolyseproducten van polystyreen met laag moleculair gewicht die aanwezig zijn in het tweede product dat wordt geproduceerd in de tweede pyrolyse reactor. Indien nodig kan dus dezelfde scheidingssectie worden gebruikt voor het scheiden van de verschillende  
20 pyrolyseproducten met laag moleculair gewicht die aanwezig zijn in het eerste en in het tweede product.

In de werkwijze volgens de onderhavige uitvinding de temperaturen en drukwaarden in de verschillende reactors, in het bijzonder de eerste en de tweede temperatuur en de eerste en de tweede gasdruk,  
25 worden bij voorkeur nagenoeg constant gehouden, maar ze mogen binnen vooraf bepaalde bereiken fluctueren. De temperaturen mogen in het bijzonder fluctueren in temperatuurbereiken rond een vooraf bepaalde waarde plus of min 10°C terwijl de drukwaarden in het bijzonder mogen fluctueren in drukbereiken rond een vooraf bepaalde waarde, uitgedrukt in  
30 bara, plus of min 10%.

In een uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de onderhavige uitvinding wordt het tweede product, dat is verwijderd uit de tweede pyrolyse reactor, gescheiden in een tweede lichtere fractie die het genoemde alfa-methylstyreen, cumeen, styreenmonomeer, ethylbenzeen en/of toluen bevat en in ten minste één tweede zwaardere fractie die styreenoligomeren bevat. Bij voorkeur wordt de tweede zwaardere fractie gerecirculeerd naar de tweede pyrolyse reactor.

In deze uitvoeringsvorm wordt het gedeelte van de styreenoligomeren dat in het tweede product terecht kan komen daaruit verwijderd, en wordt het bij voorkeur gerecirculeerd naar de tweede pyrolyse reactor om verder te worden gekraakt, zodanig dat op die manier geen afvalmateriaal wordt gegenereerd door de styreenoligomeren.

In een uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de onderhavige uitvinding, of volgens om het even welke van de voorgaande uitvoeringsvormen, is de genoemde eerste gasdruk lager dan 0,5 bara, bij voorkeur lager dan 0,1 bara en meer bij voorkeur lager dan 0,06 bara. De eerste gasdruk is in het bijzonder hoger dan 0 bara of zelfs hoger dan 0,005 bara

Er werd vastgesteld dat, voor eenzelfde temperatuur, een lagere gasdruk in de eerste pyrolyse reactor leidt tot een grotere opbrengst aan styreenmonomeer, en in het bijzonder in een kleinere opbrengst aan pyrolyseproducten met laag moleculair gewicht die een lager kookpunt hebben dan het styreenmonomeer. Tezelfdertijd zullen meer styreenoligomeren, in het bijzonder styreendimeren en -trimeren, terechtkomen in het eerste product, aangezien de kooktemperatuur van die oligomeren lager is bij lagere gasdrukwaarden. Lagere gasdrukwaarden kunnen ook leiden tot een hogere viscositeit van de eerste vloeibare fase. Een voordeel van een dergelijke hogere viscositeit is dat ze de verdamping van hogere styreenoligomeren in grotere mate kan hinderen dan de verdamping van styreendimeren en -trimeren,

zodanig dat minder van de hogere styreenoligomeren terechtkomen in het eerste product.

In een uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de onderhavige uitvinding, of volgens om het even welke van de voorgaande uitvoeringsvormen, is de genoemde eerste temperatuur hoger dan 300°C, bij voorkeur hoger dan 400°C, meer bij voorkeur hoger dan 450°C en meest bij voorkeur hoger dan 475°C. In een uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de onderhavige uitvinding of volgens om het even welke van de voorgaande uitvoeringsvormen de genoemde eerste temperatuur lager is dan 650°C, bij voorkeur lager dan 625°C, meer bij voorkeur lager dan 600°C en meest bij voorkeur lager dan 575°C.

Een hogere temperatuur verhoogt de pyrolyse- of kraaksnelheid van het styreenhoudende polymeer. Vooral voor de lagere temperaturen kan de pyrolyse- of kraaksnelheid ook worden verhoogd door middel van een katalysator.

Voor de temperaturen tot ongeveer 550°C bleek de opbrengst aan styreenmonomeer bovendien toe te nemen voor eenzelfde druk. Bij hogere temperaturen bleef de opbrengst aan styreenmonomeer nagenoeg constant, of nam hij enigszins af. De productie van styreenoligomeren nam consistent af bij stijgende temperaturen. Voor hogere temperaturen werd echter meer vast residu geproduceerd in de eerste pyrolyse reactor, in het bijzonder wanneer het uitgangproduct een aanzienlijke hoeveelheid verontreinigingen bevatte. Een minimale hoeveelheid vaste residuen is belangrijk om een hoge omzetting te verwezenlijken en om grote hoeveelheden afvalmateriaal te vermijden. Bovendien is het mogelijk, in het geval dat slechts een kleine hoeveelheid vaste residuen wordt geproduceerd, om de continue pyrolysewerkwijze slechts af en toe stop te zetten om het vaste residu te verwijderen uit de eerste reactor. Tijdens de continue fase van de pyrolysewerkwijze wordt

een hoeveelheid vloeibare fase, die bij voorkeur nagenoeg constant is, in de eerste reactor gehouden.

5 In een uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de onderhavige uitvinding, of volgens om het even welke van de voorgaande uitvoeringsvormen, is de genoemde tweede gasdruk hoger dan 2,0 bara, bij voorkeur hoger dan 4 bara, meer bij voorkeur hoger dan 8 bara en meest bij voorkeur hoger dan 12 bara. Deze uitvoeringsvorm wordt bij voorkeur gecombineerd met de uitvoeringsvorm waarbij de genoemde tweede zwaardere fractie wordt gerecirculeerd naar de genoemde tweede  
10 pyrolyse reactor.

Hoe hoger de tweede gasdruk, des te hoger de kooktemperatuur van de styreendimeren en -trimeren, en des te lager de hoeveelheid styreendimeren en -trimeren die zullen terechtkomen in de gasfase in de tweede pyrolyse reactor, d.w.z. in het tweede product. In die  
15 tweede pyrolyse reactor is de viscositeit van de vloeibare fase beduidend kleiner dan de viscositeit van de vloeibare fase in de eerste pyrolyse reactor, zodanig dat de styreendimeren en -trimeren gemakkelijker kunnen verdampen uit de vloeibare fase in de tweede pyrolyse reactor. Een hogere gasdruk verlaagt dus de hoeveelheid  
20 styreenoligomeren in het gasvormige tweede product zodanig dat minder styreenoligomeren dienen te worden verwijderd uit dat tweede product, en zodanig dat een meer doeltreffende kalking van de styreenoligomeren kan worden verwezenlijkt in de tweede pyrolyse reactor.

Bij wijze van alternatief, of bijkomend, wordt de tweede  
25 gasdruk bij voorkeur gekozen in functie van de temperatuur van de vloeibare fase in de tweede pyrolyse reactor. De tweede gasdruk wordt met meer voorkeur zodanig gekozen dat hij hoger is dan het kookpunt van een C<sub>24</sub>-koolwaterstof bij de respectievelijke temperatuur in de tweede pyrolyse reactor. De tweede gasdruk is dus bij voorkeur hoger dan of gelijk

aan een minimale gasdruk  $P_{min}$  die wordt gedefinieerd door de volgende Vergelijking 1:

$$P_{min} = 2,8 \cdot 10^{-12} T^{4,4}$$

waarbij:

5  $P_{min}$  staat voor de minimale tweede gasdruk, in bara, in de tweede reactor, en

$T$  staat voor de tweede temperatuur, in graden Celsius, in de tweede reactor.

10 Voor de lagere temperaturen in de tweede reactor, in het bijzonder voor temperaturen lager dan ongeveer 422°C, dient de tweede gasdruk ten minste 1,0 bara te bedragen. Bij gebruik in combinatie met de voorgaande uitvoeringsvorm dienen de minimale tweede drukwaarden volgens die voorgaande uitvoeringsvorm te worden aangewend voor de lagere tweede temperaturen, d.w.z. voor die temperaturen waarvoor Vergelijking 1 een  
15 lagere tweede gasdruk zou opleveren dan de gasdruk die wordt gedefinieerd door de voorgaande uitvoeringsvorm.

In een uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de onderhavige uitvinding, of volgens om het even welke van de voorgaande uitvoeringsvormen, is de genoemde tweede gasdruk lager dan 30 bara en  
20 bij voorkeur lager dan 25 bara.

Hoewel een hogere tweede gasdruk voordelig is om een meer doeltreffende kalking van de styreenoligomeren te verwezenlijken in de tweede pyrolyse reactor, is de tweede gasdruk bij voorkeur niet te hoog, om de kosten van de installatie te drukken. Bovendien kunnen hogere  
25 gasdrukwaarden leiden tot de productie van meer gassen, d.w.z. meer lichte eindproducten.

In een uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de onderhavige uitvinding, of volgens om het even welke van de voorgaande uitvoeringsvormen, is de genoemde tweede temperatuur lager dan 600°C,

bij voorkeur lager dan 550°C, meer bij voorkeur lager dan 500°C en meest bij voorkeur lager dan 450°C.

5 Een voordeel van een lagere tweede temperatuur is dat het kookpunt van de styreenoligomeren lager is bij die temperaturen, zodanig dat hun gehalte in de gasfase, d.w.z. in het tweede product, wordt verlaagd.

10 In een uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de onderhavige uitvinding, of volgens om het even welke van de voorgaande uitvoeringsvormen, is de genoemde tweede temperatuur hoger dan 300°C, bij voorkeur hoger dan 350°C, of hoger dan 375°C of hoger dan 400°C.

Een hogere temperatuur verhoogt de pyrolyse- of kraaksnelheid van de styreenoligomeren. Vooral voor de lagere temperaturen kan de pyrolyse- of kraaksnelheid ook worden verhoogd door middel van een katalysator.

15 In een uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de onderhavige uitvinding, of volgens om het even welke van de voorgaande uitvoeringsvormen, worden de genoemde eerste pyrolyse reactor en de genoemde tweede pyrolyse reactor bedreven volgens een continu proces.

20 Zo kan een hoge productiecapaciteit worden bereikt. Tijdens het continue productieproces wordt het kunststofmateriaal met een zodanig debiet toegevoerd naar de eerste pyrolyse reactor dat de eerste pyrolyse reactor continu een hoeveelheid van de eerste vloeibare fase bevat, bij voorkeur een nagenoeg constante hoeveelheid van de eerste vloeibare fase.

25 In een uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de onderhavige uitvinding, of volgens om het even welke van de voorgaande uitvoeringsvormen, omvat ze de volgende stappen:

30 - het toevoeren van een gedeelte van de genoemde eerste vloeibare fase uit de genoemde eerste pyrolyse reactor naar een derde pyrolyse reactor;

- 5 - het kraken van het genoemde gedeelte van de genoemde eerste vloeibare fase op een derde temperatuur, bij een derde gasdruk, in de genoemde derde pyrolyse reactor om een derde product te produceren dat styreenmonomeer en styreenoligomeren bevat en dat gasvormig is bij de genoemde derde temperatuur en de genoemde derde gasdruk, waarbij het genoemde derde product een derde gasfase vormt in de derde pyrolyse reactor en het genoemde gedeelte van de genoemde eerste vloeibare fase dat daarin wordt gekraakt een derde vloeibare fase; en
- 10 - het verwijderen van het derde product uit de derde pyrolyse reactor tijdens de productie ervan, in het bijzonder om de derde pyrolyse reactor op de genoemde derde gasdruk te houden.

Hoewel de pyrolyseomstandigheden, in het bijzonder de omstandigheden betreffende temperatuur en de gasdruk, kunnen worden geoptimaliseerd in de eerste pyrolyse reactor om de productie van vaste residuen te minimaliseren, zal een zekere hoeveelheid vast residu worden geproduceerd. In de eerste pyrolyse reactor wordt het kunststofmateriaal gekraakt tot verdamping, d.w.z. het eerste product is gasvormig. Ieder vast residu zal bijgevolg achterblijven in de eerste pyrolyse reactor, en zal, in het bijzonder, niet daaruit verwijderd worden via de (gasvormige) productstroom.

In de pyrolysewerkwijze die wordt bekendgemaakt in DE 199 28 645 is de pyrolyse reactor een buisvormige reactor met aan het stroomafwaartse uiteinde ervan een schroef om het vaste residu zo nu en dan te verwijderen uit de reactor.

Een voordeel van de uitvoeringsvorm met de derde reactor is dat de werking van de eerste pyrolyse reactor niet hoeft te worden onderbroken om het vaste residu te verwijderen. Bovendien hoeft de eerste vloeibare fase niet te worden gekraakt en volledig verdampt om het vaste residu te kunnen verwijderen. In plaats daarvan wordt een eventueel

vast residu overgebracht naar de derde pyrolyse reactor samen met het gedeelte van de eerste vloeibare fase dat wordt toegevoerd van de eerste reactor naar de derde. Om het vaste residu te verwijderen uit de derde pyrolyse reactor kan de werking daarvan gemakkelijk worden onderbroken  
5 zonder de werking van de eerste pyrolyse reactor stil te leggen. Een bijkomend voordeel is dat, met name wanneer de derde pyrolyse reactor moet worden leeggemaakt, de reactoromstandigheden kunnen worden gewijzigd, bijvoorbeeld om de vloeibare fase sneller of vollediger te kraken/verwijderen.

10 In een uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de voorgaande uitvoeringsvorm omvat de werkwijze de stap van het toevoegen van het derde product dat is verwijderd uit de genoemde derde pyrolyse reactor aan het eerste product dat is verwijderd uit de genoemde eerste pyrolyse reactor, en het vervolgens scheiden van het eerste en het  
15 derde product in de genoemde eerste lichtere fractie en in de genoemde eerste zwaardere fractie.

Het eerste en het derde pyrolyseproduct worden dus samen verder verwerkt als één product, zodanig dat het gebruik van de derde pyrolyse reactor de verdere verwerkingsstappen of de installatie waarin die  
20 verdere verwerkingsstappen worden uitgevoerd niet ingewikkelder maakt.

In een uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de voorgaande uitvoeringsvormen waarbij gebruik wordt gemaakt van de derde pyrolyse reactor is de genoemde derde druk lager dan 10,0 bara, bij voorkeur lager dan 7,0 bara en meer bij voorkeur lager dan 4,0 bara. De  
25 derde gasdruk is in het bijzonder hoger dan 0 bara of hoger dan 0,005 bara.

Een derde gasdruk die hoger is dan de eerste gasdruk, d.w.z. dan de druk in de eerste pyrolyse reactor, kan voordelig zijn om een meer doeltreffende en volledige kalking te verwezenlijken van de verschillende  
30 bestanddelen van het kunststofmateriaal, met name wanneer dat



kunststofmateriaal een afvalmateriaal is dat mogelijk een gehalte aan andere materialen bevat dan het genoemde styreenhoudende polymeer. Dergelijke materialen die moeilijker te kraken zijn, zullen bijgevolg eveneens pyrolyse ondergaan, waardoor minder vast afval wordt geproduceerd. De derde gasdruk kan hoger zijn dan 1,0 bara of hoger dan 2,0 bara of hoger dan 3,0 bara.

In een uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens om het even welke van de voorgaande uitvoeringsvormen waarbij gebruik wordt gemaakt van de derde pyrolyse reactor, is de genoemde derde temperatuur hoger dan 300°C, bij voorkeur hoger dan 400°C, meer bij voorkeur hoger dan 450°C en meest bij voorkeur hoger dan 475°C. In een uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens om het even welke van de voorgaande uitvoeringsvormen waarbij gebruik wordt gemaakt van de derde pyrolyse reactor, is de genoemde derde temperatuur lager dan 650°C, bij voorkeur lager dan 625°C, meer bij voorkeur lager dan 600°C en meest bij voorkeur lager dan 575°C.

Wanneer de derde pyrolyse reactor op dezelfde manier wordt bedreven als de eerste pyrolyse reactor, d.w.z. wanneer er een hoeveelheid derde vloeibare fase in wordt gehouden die bij voorkeur nagenoeg constant is, levert de selectie van die temperaturen dezelfde voordelen op als hoger beschreven voor de eerste pyrolyse reactor. Wanneer het toevoeren van eerste vloeibare fase in de derde pyrolyse reactor is stopgezet, kunnen andere, in het bijzonder hogere temperaturen worden gebruikt om de derde vloeibare fase sneller en/of vollediger te verwijderen uit de derde pyrolyse reactor.

In een uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de onderhavige uitvinding, of volgens om het even welke van de voorgaande uitvoeringsvormen, verschilt de genoemde tweede pyrolyse reactor van de genoemde eerste pyrolyse reactor.

In deze uitvoeringsvorm kan het eerste gasvormige product zo continu worden geproduceerd in de eerste pyrolyse reactor terwijl het tweede gasvormige product gelijktijdig wordt geproduceerd in de tweede pyrolyse reactor. Op die manier zijn lange productiecampagnes mogelijk en kan een hoge productiecapaciteit worden verwezenlijkt.

In een alternatieve uitvoeringsvorm is de genoemde tweede pyrolyse reactor gelijk aan de genoemde eerste pyrolyse reactor, waarbij de genoemde eerste zwaardere fractie wordt toegevoerd in de genoemde eerste pyrolyse reactor nadat is gestopt met het daarin produceren van het genoemde eerste product.

Het eerste pyrolyseproduct kan gedurende een zekere tijd worden geproduceerd, bij voorkeur volgens een continue werkwijze, in de eerste pyrolyse reactor, en de eerste zwaardere fractie die daaruit wordt verwijderd kan worden opgeslagen in één of meer opslagtanks. De productiecampagne kan worden voortgezet tot de opslagtanks gevuld zijn met eerste zwaardere fractie. Aan het einde van de productiecampagne wordt de toevoer van kunststofafvalmateriaal naar de reactor stopgezet en wordt de pyrolysewerkwijze bij voorkeur voortgezet tot enkel een droog product overblijft in de reactor, in het bijzonder droog koolresidu. Het is mogelijk om de temperatuur van de reactor te verhogen in deze laatste stap van de productiecampagne. Vervolgens kan het koolresidu worden verwijderd uit de eerste pyrolyse reactor en kan die eerste pyrolyse reactor dan worden geladen met de eerste zwaardere fractie uit de opslagtanks, en bedreven onder de tweede druk- en temperaturomstandigheden.

Andere voordelen en bijzonderheden van de onderhavige uitvinding zullen blijken uit de volgende beschrijving van enkele specifieke uitvoeringsvormen van de werkwijze volgens de uitvinding. Deze beschrijving wordt enkel bij wijze van voorbeeld gegeven en is niet als beperkend bedoeld voor de reikwijdte van de uitvinding. De

referentiecijfers die in de beschrijving worden gebruikt, verwijzen naar de bijgevoegde tekeningen, waarbij:

5                   Figuur 1 een schematisch stroomschema is dat een voorkeursuitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de onderhavige uitvinding illustreert; en

                  Figuur 2 een grafiek is die de totale productie van vluchtige stoffen toont in functie van de temperatuur en druk in de tweede reactor die werden gebruikt in de tests die werden uitgevoerd met de tweede reactor om de zware oligomeerfractie erin aan pyrolyse te onderwerpen.

10                  De uitvinding betreft in het algemeen een werkwijze voor het recupereren van ten minste styreenmonomeer uit een kunststofmateriaal dat ten minste één styreenhoudend polymeer bevat. Dit styreenhoudende polymeer wordt hierna polystyreen genoemd. Het kunststofmateriaal zal doorgaans een afvalmateriaal zijn. Dat afvalmateriaal kan productieafval en/of consumptieafval zijn. Het kunststofmateriaal kan dus vervuild zijn met andere materialen, in het bijzonder met andere kunststofmaterialen, maar ook met niet-kunststofafvalmaterialen zoals biopolymeren (eiwitten, polysachariden enz.), mineralen en metalen. Het bevat echter bij voorkeur ten minste 90% in drooggewicht, of met meer voorkeur ten minste 95% in drooggewicht polystyreen.

20                  Een specifieke uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de uitvinding is geïllustreerd in Figuur 1. In het bijzonder zijn in dit diagram de verschillende pijpen, reactors, destillatiekolommen en andere bestanddelen schematisch aangegeven, maar de nodige kleppen en pompen zijn niet aangegeven, aangezien een vakman weet hoe en waar dergelijke pompen en kleppen dienen te worden voorzien, afhankelijk van de drukomstandigheden die hierna zullen worden beschreven.

25                  In een eerste fase van de werkwijze die is geïllustreerd in Figuur 1 wordt het kunststofmateriaal gesmolten in een extrusie-inrichting  
30                  1. Het vaste kunststofmateriaal wordt toegevoerd in een inlaat 2 van de

extrusie-inrichting 1 en verlaat de extrusie-inrichting 1 via haar uitlaat 3. Terwijl het zich van de inlaat 2 naar de uitlaat 3 verplaatst, wordt het kunststofmateriaal geleidelijk verwarmd tot een temperatuur van bijvoorbeeld 300°C, zodanig dat het zich in gesmolten toestand bevindt  
5 aan de uitlaat 3. Wanneer het verwarmd is tot een temperatuur van ongeveer 100°C zal het aanwezige vocht verdampen en worden verwijderd via een vochtafvoerpijp 4. In de nabijheid van de uitlaat 3 van de extrusie-inrichting 1 worden de gassen die reeds geproduceerd zijn in de extrusie-inrichting 1 door een gedeeltelijke afbraak van het  
10 kunststofmateriaal verwijderd via een uitlaat 5 en via een pijp 6 toegevoerd naar een verbrandingsinstallatie 7 om de energie recupereren die in die gassen opgeslagen zit. De verbrandingsinstallatie 7 omvat bij voorkeur een gecombineerde generator van warmte en vermogen.

Het gesmolten kunststofmateriaal dat wordt geproduceerd in  
15 de extrusie-inrichting 1 wordt via een pijp 8 toegevoerd naar een eerste pyrolysereactor 9. Die reactor 9 bevat een eerste vloeibare fase 10 die wordt verwarmd tot een eerste temperatuur. De vloeibare fase 10 wordt bij voorkeur omgeroerd door middel van een roerinrichting 11 om een gelijkmatige temperatuur te verkrijgen in de vloeibare fase 10. De  
20 temperatuur van de vloeibare fase 10 wordt bij voorkeur op een vooraf bepaalde temperatuur gehandhaafd tussen 300 en 650°C, meer bij voorkeur tussen 450 en 600°C. De eerste temperatuur wordt gekozen om een pyrolyse teweeg te brengen van het gesmolten polystyreen. De  
25 gasdruk in de eerste pyrolysereactor 9 wordt zodanig gekozen dat een deel van de pyrolyseproducten kan verdampen uit de vloeibare fase 10 en een eerste product kan produceren dat een eerste gasfase 12 vormt boven de vloeibare fase 10 in de pyrolysereactor 9. Deze gasdruk is lager dan 1,0 bara, bij voorkeur lager dan 0,5 bara en meer bij voorkeur lager dan 0,1 bara of zelfs lager dan of gelijk aan 0,06 bara. Deze eerste gasdruk is  
30 bijvoorbeeld gelijk aan ongeveer 0,05 bara of ongeveer 0,02 bara.

Het eerste product dient voornamelijk styreenmonomeer te bevatten, dat kan worden gebruikt bij de productie van nieuw polystyreen. Gasvormige producten zoals waterstof, methaan, ethaan, ethyleen, propaan, propyleen, butaan, isobutaan en buteen worden bij voorkeur niet geproduceerd, of slechts in een relatief kleine hoeveelheid. Naast  
5 styreenmonomeer kunnen ook andere vloeibare pyrolyseproducten van polystyreen met laag moleculair gewicht worden geproduceerd, zoals alfa-methylstyreen, cumeen, ethylbenzeen en toluen, als aanvulling op styreenmonomeer.

10 De eerste temperatuur en de eerste gasdruk kunnen worden gekozen om de productie van styreenmonomeer in de eerste pyrolyse reactor te optimaliseren. Bij voorkeur worden de eerste temperatuur en de eerste gasdruk ook gekozen om de productie van vast  
15 residu te minimaliseren, in het bijzonder van koolresidu. In de werkwijze volgens de onderhavige uitvinding kan de eerste temperatuur zo hoog zijn, en de eerste gasdruk zo laag, dat een relatief grote hoeveelheid styreenoligomeren ook in de eerste gasfase terecht komt. Die styreenoligomeren zullen dan ook verder worden gekraakt in een volgende fase van de pyrolyse werkwijze, zoals hierna beschreven.

20 De eerste gasfase 12, d.w.z. het eerste product dat wordt geproduceerd in de eerste pyrolyse reactor 9, wordt continu verwijderd uit de eerste pyrolyse reactor 9, via pijp 13, om de eerste pyrolyse reactor 9 op de eerste gasdruk te houden. Die eerste gasdruk kan in zekere mate fluctueren maar wordt bij voorkeur nagenoeg constant gehouden. Het  
25 gasvormige eerste product wordt via de pijp 13 toegevoerd naar een eerste blusrichting 14, die uitgerust is met een koeler 15, waarbij de blusrichting 14 zich bij voorkeur op een druk bevindt die nagenoeg gelijk is aan de gasdruk in de eerste pyrolyse reactor 9.

30 In de blusrichting 14 wordt het eerste product gescheiden in een eerste lichtere fractie die het merendeel van het styreenmonomeer

bevat en in een eerste zwaardere fractie die het merendeel van de styreenoligomeren bevat. Aan de bovenzijde worden de lichte stoffen, d.w.z. de gassen, verwijderd via een pijp 16 naar de verbrandingsinstallatie 7. De eerste lichtere fractie wordt via een pijp 17 toegevoerd naar een reservoir 18 voor ruw styreenmonomeer terwijl de eerste zwaardere fractie via een pijp 19 wordt toegevoerd naar een reservoir 20 voor styreenoligomeer.

De eerste lichtere fractie bevat in het bijzonder styreenmonomeer en alfa-methylstyreen, cumeen, ethylbenzeen, toluen en benzeen. De eerste lichtere fractie wordt via een pijp 21 toegevoerd naar een eerste destillatiekolom 22, die uitgerust is met een condensator 23 en een reboiler 24. Aan de onderzijde wordt een zware fractie, die alfa-methylstyreen en cumeen bevat, verwijderd uit de eerste destillatiekolom 22 en via een pijp 25 toegevoerd naar een reservoir 26 voor alfa-methylstyreen en cumeen. Indien nodig kunnen die twee polystyreenpyrolyseproducten verder van elkaar worden gescheiden. De lichte fractie, die aan de bovenzijde wordt verwijderd, bevat styreenmonomeer en ethylbenzeen, toluen en benzeen, en wordt via een pijp 27 toegevoerd naar een tweede destillatiekolom 28, die uitgerust is met een condensator 29 en een reboiler 30.

Aan de onderzijde van de tweede destillatiekolom wordt een fractie verwijderd met een te hoog kookpunt, die via een pijp 31 wordt toegevoerd naar een reservoir 32. Die fractie kan ofwel worden verbrand, ofwel worden gerecirculeerd naar het reservoir 18 voor ruw styreen (niet aangeduid). Op een iets hoger niveau van de tweede destillatiekolom wordt de styreenmonomeerfractie verwijderd, die via een pijp 33 wordt toegevoerd naar een styreenmonomeerreservoir 34. Aan de bovenzijde wordt een lichtere fractie verwijderd, die ethylbenzeen, toluen en benzeen bevat, en die via een pijp 35 wordt toegevoerd naar een reservoir 36 voor

ethylbenzeen, toluen en benzeen. Indien nodig kunnen die drie polystyreenpyrolyseproducten verder van elkaar worden gescheiden.

De styreenoligomeerfractie die zich in het reservoir 20 voor styreenoligomeer bevindt, wordt via een pijp 37 toegevoerd naar een  
5 tweede pyrolyse reactor 38. Die tweede pyrolyse reactor 38 is bij voorkeur een zogenaamde *vis breaker*, waarin de viscositeit van de eerste zwaardere fractie wordt verlaagd.

De tweede pyrolyse reactor 38 is bij voorkeur een andere reactor dan de eerste reactor 9. Het is echter ook mogelijk om de eerste  
10 reactor 9 eveneens te gebruiken voor het opnieuw kraken van de styreenoligomeerfractie die is opgeslagen in het reservoir 20 voor styreenoligomeer. In dat geval moet de productie van het eerste product in de eerste reactor eerst worden stopgezet, en moeten de reactoromstandigheden worden ingesteld op dezelfde manier als hierna  
15 zal worden uiteengezet voor de tweede reactor 38 die niet dezelfde is als de eerste reactor 9.

De temperatuur van de vloeibare fase die wordt gevormd door de eerste zwaardere fractie die wordt gekraakt in de tweede pyrolyse reactor, d.w.z. de tweede temperatuur, wordt bij voorkeur  
20 gehandhaafd op een vooraf bepaalde temperatuur tussen 300 en 650°C, meer bij voorkeur tussen 350 en 500°C en meest bij voorkeur tussen 400 en 450°C. Die tweede temperatuur wordt gekozen om een pyrolyse teweeg te brengen van de styreenoligomeren. De tweede temperatuur kan in zekere mate fluctueren maar wordt bij voorkeur nagenoeg constant  
25 gehouden. De gasdruk in de tweede pyrolyse reactor 38 wordt bij voorkeur zodanig gekozen dat verdamping van de styreenoligomeren wordt gereduceerd om het kraken ervan te bevorderen in de vloeibare fase. Die tweede gasdruk is bij voorkeur hoger dan 1,0 bara, meer bij voorkeur hoger dan 4 bara en meest bij voorkeur hoger dan 8 bara of zelfs hoger dan  
30 12 bara. De tweede gasdruk is bijvoorbeeld gelijk aan ongeveer 15 bara.

De tweede gasdruk wordt bij voorkeur gekozen in functie van de tweede temperatuur in de tweede reactor 38. Hoe hoger die temperatuur, des te hoger de dampdruk van de pyrolyseproducten die worden geproduceerd in de reactor, in het bijzonder de dampdruk van de styreentrimeren. De minimumwaarde  $P_{min}$  van de druk die wordt gehandhaafd in de tweede reactor ligt bij voorkeur in de grootteorde van de dampdruk van styreentrimeer. De tweede gasdruk is dus bij voorkeur hoger dan of gelijk aan de minimale gasdruk  $P_{min}$  die wordt gedefinieerd door de volgende Vergelijking 1:

$$P_{min} = 2,8 \cdot 10^{-12} T^{4,4}$$

waarbij:

$P_{min}$  staat voor de minimale tweede gasdruk, in bara, in de tweede reactor, en

$T$  staat voor de tweede temperatuur, in graden Celsius, in de tweede reactor,

met dien verstande dat de tweede gasdruk altijd hoger moet zijn dan 1 bara, ook voor de lagere temperaturen in de tweede reactor, in het bijzonder voor de temperaturen lager dan ongeveer 422°C, aangezien, volgens Vergelijking 1, die temperatuur overeenstemt met een druk van 1,0 bara.

De grafiek van Vergelijking 1 tussen de temperatuur in de tweede reactor en de minimale gasdruk daarin is geïllustreerd in Figuur 2.

De gasfase die wordt geproduceerd in de tweede pyrolyse reactor 38, d.w.z. het tweede product dat polystyreenpyrolyseproducten met laag moleculair gewicht en ook nog steeds een gedeelte van de styreenoligomeren bevat, wordt via een pijp 39 toegevoerd naar een tweede blusinrichting 40, die uitgerust is met een koeler 41. In de blusinrichting 40 wordt het tweede product gescheiden in een tweede lichtere fractie, die het merendeel bevat van de polystyreenpyrolyseproducten met laag moleculair gewicht, en in een



tweede zwaardere fractie die de overige styreenoligomeren bevat. Aan de bovenzijde worden de lichte stoffen, d.w.z. de gassen, via een pijp 42 verwijderd naar de verbrandingsinstallatie 7. De tweede zwaardere fractie wordt via een pijp 43 gerecirculeerd naar het reservoir 20 voor styreenoligomeer terwijl de tweede lichtere fractie via een pijp 44 wordt toegevoerd naar een derde destillatiekolom 45, dat uitgerust is met een reboiler 46 en een condensator 47.

Aan de onderzijde van de derde destillatiekolom 45 wordt een fractie met een te hoog kookpunt verwijderd, die wordt via een pijp 48 gerecirculeerd naar het reservoir 20 voor styreenoligomeer. Op een iets hoger niveau van de derde destillatiekolom 45 wordt een fractie verwijderd die voornamelijk alfa-methylstyreen en cumeen bevat en die via een pijp 33 wordt toegevoerd naar het reservoir 26 voor alfa-methylstyreen en cumeen. Aan de bovenzijde wordt een lichtere fractie verwijderd, die ethylbenzeen, toluen en benzeen bevat, en die via een pijp 50 wordt toegevoerd naar het reservoir 36 voor ethylbenzeen, toluen en benzeen.

De lichtere fractie kan ook nog steeds een kleine hoeveelheid styreenmonomeer bevatten. Die lichtere fractie zou daarom bij wijze van alternatief kunnen worden toegevoerd naar het reservoir 18 voor ruw styreen in plaats van rechtstreeks naar het reservoir 36 voor ethylbenzeen, toluen en benzeen. Op die manier zou ook die kleine hoeveelheid styreenmonomeer bijkomend kunnen worden gerecirculeerd. In de praktijk kan het echter te verkiezen zijn om die lichtere fractie rechtstreeks naar het reservoir 36 toe te voeren, zodanig dat de eerste en de tweede destillatiekolom minder worden belast.

Om het mogelijk te maken om het vaste residu dat wordt geproduceerd in de eerste pyrolyse reactor 9 te verwijderen zonder de werking daarvan te moeten stilleggen, omvat de installatie die is geïllustreerd in Figuur 1 een derde pyrolyse reactor 51. Die derde pyrolyse reactor 51 wordt via een pijp 52 gevoed met eerste vloeibare fase

10 die is verwijderd uit de eerste pyrolyse reactor 9. De eerste vloeibare fase 10 wordt verwijderd uit de onderzijde van de eerste pyrolyse reactor 9 zodanig dat een eventueel vast residu samen met die eerste vloeibare fase 10 wordt overgebracht van de eerste pyrolyse reactor 9 naar de derde pyrolyse reactor 51.

5 Die reactor 51 bevat een derde vloeibare fase 53 die wordt verwarmd tot een derde temperatuur. De vloeibare fase 53 wordt bij voorkeur omgeroerd door middel van een roerinrichting 54 om een gelijkmatige temperatuur te verkrijgen in de vloeibare fase 53. De 10 temperatuur van de vloeibare fase 53, d.w.z. de derde temperatuur, wordt bij voorkeur op een vooraf bepaalde temperatuur gehandhaafd tussen 300 en 650°C, meer bij voorkeur tussen 450 en 600°C. De derde temperatuur wordt gekozen om een pyrolyse teweeg te brengen van de oligomere of 15 polymere materialen die aanwezig zijn in de vloeibare fase 53. De gasdruk in de derde pyrolyse reactor 9 wordt zodanig gekozen dat een deel van de pyrolyseproducten kan verdampen uit de vloeibare fase 53 en een derde product kan produceren dat een derde gasfase 55 vormt boven de derde vloeibare fase 53 in de pyrolyse reactor 51. Die gasdruk is bij voorkeur lager dan 10,0 bara, meer bij voorkeur lager dan 7,0 bara en meest bij voorkeur 20 lager dan 4,0 bara. Deze eerste gasdruk is bijvoorbeeld gelijk aan ongeveer 0,05 bara. De derde gasdruk is in het bijzonder hoger dan 0 bara of hoger dan 0,005 bara. De derde gasdruk is bij voorkeur hoger dan 1,0 bara of hoger dan 2,0 bara of hoger dan 3,0 bara. Bij voorkeur is hij gelegen tussen 3,0 en 4,0 bara. De derde gasdruk is bij voorkeur hoger 25 dan de eerste gasdruk om een meer volledige pyrolyse te verkrijgen van de polymeren en oligomeren in de derde pyrolyse reactor.

Het derde product bevat o.a. styreenmonomeer en styreenoligomeren. Het wordt verwijderd uit de derde pyrolyse reactor 51 om de gasdruk daarin nagenoeg constant te houden. Het derde product 30 wordt via een pijp 56 toegevoegd aan het eerste product dat wordt

geproduceerd in de eerste pyrolyse reactor 9, en wordt zo samen met het eerste product toegevoerd naar de blusinrichting 14, waar het mengsel van beide producten wordt gescheiden in de eerste lichtere fractie, die het ruwe styreenmonomeer bevat, en de eerste zwaardere fractie, die het merendeel van de styreenoligomeren bevat. In plaats van het derde product toe te voegen aan het eerste product voordat het mengsel in de blusinrichting 14 wordt ingevoerd, zouden ze bij wijze van alternatief ook afzonderlijk naar de blusinrichting 14 kunnen toegevoerd.

Wanneer vast residu zich heeft opgehoopt in de derde pyrolyse reactor 51, kan de toevoer van vloeibare fase 10 van de eerste 9 naar de derde pyrolyse reactor 51 worden stopgezet en kan de pyrolyse reactie in de derde pyrolyse reactor 51 worden voortgezet tot de volledige vloeibare fase daarin pyrolyse heeft ondergaan. Het overblijvende vast residu kan dan worden afgevoerd in een container 57 voor vast residu.

In het geval dat geen derde pyrolyse reactor 51 wordt gebruikt, kan het vaste residu dat zich heeft opgehoopt in de eerste pyrolyse reactor 9 worden afgevoerd in een bijkomende container 58 voor vast residu nadat de toevoer van gesmolten kunststofmateriaal uit de extrusie-inrichting 1 is stopgezet en nadat de pyrolyse reactie in de eerste pyrolyse reactor 9 is voortgezet tot daarin enkel vast residu overblijft. Dat vast residu kan gemakkelijk worden verwijderd uit de eerste pyrolyse reactor. In het geval dat slechts één reactor wordt gebruikt, d.w.z. in het geval dat de tweede pyrolyse reactor dezelfde is als de eerste pyrolyse reactor, kan de eerste zware fractie die is opgeslagen in het reservoir 20 voor styreenoligomeer dan eerst tot pyrolyse worden gebracht in die pyrolyse reactor voor daarin opnieuw begonnen wordt met het kraken van kunststofmateriaal.

De volgende experimenten tonen de pyrolyse reacties die kunnen worden toegepast in de hierboven beschreven uitvoeringsvorm.

## Experimenten

### Pyrolysefase 1: tests met consumptiepolystyreen

5 Gesorteerd afval van consumptiepolystyreen (PS) dat afkomstig is van huis-aan-huisvuilnisophaling met niet meer dan 10% onzuiverheden en andere kunststoffen werd toegevoerd in een extrusie-inrichting. De extrusie-inrichting werd gebruikt om het PS-afval te smelten en het op 320°C te brengen. Het doorstroomdebiet door de extrusie-inrichting was gelegen tussen 2 en 3 kg/h.

10 De PS-smeltmassa die de extrusie-inrichting verliet op een temperatuur van 320°C werd continu toegevoerd in een kraakinrichting, d.w.z. in een pyrolyse reactor. De kraakinrichting was een reactor met continu omgeroerde tank met een volume van 5L. Afhankelijk van de verwerkingsomstandigheden in de reactor fluctueerde de hoeveelheid achtergebleven materiaal, d.w.z. de vloeibare fase, tussen 0,5 en 2L. Het  
15 achtergebleven materiaal bestond uit gesmolten, gedeeltelijk gekraakte polymeren. De verwarming van de reactor werd extern voorzien, via verwarmingsstaven die warmte straalden naar het roestvrijstalen reactorlichaam. De temperatuur in de reactor werd gemeten in de vloeibare fase en op de gewenste waarde gehouden.

20 Eerst werd de reactor gespoeld met stikstof. Daarna werd een vooraf bepaalde druk tot stand gebracht in de reactor door middel van een vacuümpomp om een vacuüm te creëren, of door het injecteren van stikstofgas om een druk in de reactor te doen ontstaan. De gasdruk in de reactor werd gemeten in het bovenste deel van reactor, waarmee dus in  
25 de praktijk de gasdruk werd aangeduid. Tijdens het toevoeren en kraken van de kunststofsmeltmassa werd de druk constant gehouden.

30 De toevoer van de kunststofsmeltmassa werd gedurende enkele uren volgehouden. Ongeveer om de 30 minuten werden monsters genomen, en de hierna opgegeven analyseresultaten zijn een gemiddelde van 3 monsters.

Het gasvormige product dat werd gevormd in de reactor werd langs een reeks van 3 condensators gevoerd die op verschillende temperaturen werden gehouden om een doeltreffende condensatie van het gasvormige product mogelijk te maken. De eerste condensatie werd uitgevoerd bij een hogere temperatuur in het bereik van 40-60°C, terwijl de volgende twee condensatiestappen werden uitgevoerd bij een lagere temperatuur tussen -10° en 20°C. De druk in de condensatietrein was dezelfde als de druk in de reactor. De vloeibare fracties die in de verschillende condensatiestappen werden opgevangen, werden met elkaar vermengd en vervolgens als geheel geanalyseerd. De kraakomstandigheden en de resulterende samenstellingen van de producten die werden verkregen in de verschillende tests zijn aangegeven in Tabel 1.

**Tabel 1:** Kraakomstandigheden en samenstellingen (in gew.-%) van het gecondenseerde kraakproduct dat werd verkregen in fase 1 van het kraakproces met verontreinigd consumptiepolystyreen.

	Test 1	Test 2	Test 3	Test 4	Test 5	Test 6	Test 7
<b>Kraakomstandigheden</b>							
Temp. (°C)	450	450	500	550	550	600	600
Druk (bara)	1	0,02	0,5	1	0,02	1	0,02
<b>Samenstelling kraakproduct</b>							
Residu/vaste stoffen	9,57	8,36	8,39	5,97	5,45	11,43	13,83
Gas	0,05	0,05	0,04	0,05	0,09	0,08	0,05
Dimeren, trimeren en hogere oligomeren	32,16	42,75	33,01	26,83	30,96	20,61	23,44
Kookpunt > styreen	7,59	3,6	6,8	8,06	4,37	7,57	4,63
Styreen	34,49	40,91	40,63	42,26	52,47	41,33	52,09
Kookpunt < styreen	16,14	4,33	11,13	16,83	6,66	18,98	5,96

Wanneer test 1 wordt vergeleken met test 4, en test 2 met test 5, is te zien dat wanneer de temperatuur wordt verhoogd van 450°C tot 550°C terwijl de gasdruk constant wordt gehouden, de opbrengst aan styreen toeneemt en de productie van styreenoligomeer afneemt.

5 Wanneer de temperatuur verder wordt verhoogd tot 600°C, blijft de opbrengst aan styreen nagenoeg gelijk, of heeft die zelfs de neiging om te dalen, terwijl de productie van styreenoligomeer nog steeds afneemt. Tezelfdertijd wordt meer residu geproduceerd. Aangezien residu een afvalproduct is terwijl oligomeren nog verder kunnen worden verwerkt in

10 fase 2, is de optimale reactietemperatuur in de eerste kraakfase gelegen tussen 550 en 600°C.

Voor elk van de geteste temperaturen resulteerde een daling van de gasdruk van 1 bara tot 0,02 bara in een toename van de opbrengst aan styreen en tezelfdertijd in een toename van de productie van styreenoligomeer. Het is dus duidelijk te verkiezen om tijdens de eerste

15 kraakfase onder vacuümomstandigheden te werken.

In overeenstemming met de onderhavige uitvinding is vastgesteld dat de geproduceerde styreenoligomeren niet verloren gaan maar in fase 2 van de pyrolysewerkwijze van de onderhavige uitvinding

20 kunnen worden omgezet in waardevolle styreenpyrolyseproducten met laag moleculair gewicht.

#### Pyrolysefase 1: tests met zuiver polystyreen voor algemeen gebruik

Er werd een aantal tests gevoerd op dezelfde manier als

25 beschreven voor de voorgaande tests, maar ditmaal met zuiver polystyreen voor algemeen gebruik (GPPS) in plaats van met verontreinigd consumptiepolystyreen. Daarbij bleek dat veel minder residu/vaste stoffen werden geproduceerd en dat veel hogere opbrengsten aan styreenmonomeer konden worden verwezenlijkt. In de praktijk is de

30 onderhavige uitvinding echter in het bijzonder bedoeld om het mogelijk te

maken verontreinigd consumptiepolystyreenafvalmateriaal te recyclen. De resultaten van de tests die werden uitgevoerd met het zuivere GPPS zijn aangegeven in Tabel 2.

- 5 **Tabel 2:** Kraakomstandigheden en samenstellingen (in gew.-%) van het gecondenseerde kraakproduct dat werd verkregen in fase 1 van het kraakproces met zuiver GPPS.

	Test 8	Test 9	Test 10	Test 11
<b>Kraakomstandigheden</b>				
Temp. (°C)	350	400	550	600
Druk (bara)	0,02	0,02	0,02	0,02
<b>Samenstelling kraakproduct</b>				
Dimeren en trimeren	40,4	36,7	23,9	37,6
Kookpunt > styreen	1,0	1,4	2,1	2,1
Styreen	47,3	50,7	63,3	70,2
Kookpunt < styreen	1,0	1,2	1,7	2,5

- 10 De verschillende hoeveelheden werden bepaald door middel van GC-FID. Een aantal verbindingen konden niet worden gemeten met behulp van die techniek, in het bijzonder de hogere oligomeren, waardoor het totale percentage niet gelijk is aan 100%. In deze tests werd vrijwel geen vast residu gevormd.

- 15 Bij de hier toegepaste lage druk is te zien dat een toename van de temperatuur de opbrengst aan styreenmonomeer verhoogt. Met zuiver polystyreen kunnen veel hogere opbrengsten aan styreenmonomeer worden verwezenlijkt dan met verontreinigd consumptiepolystyreen. In het geval van consumptiepolystyreen resulteerde de hoge temperatuur van 600°C ook in de hoogste opbrengst  
20 aan styreenmonomeer, maar die was niet geschikt omdat meer

residu/vaste stoffen werden geproduceerd en minder styreenoligomeren die nog verder konden worden gekraakt.

### Pyrolysefase 2

5 Een polystyreenmateriaal werd gedeeltelijk tot pyrolyse gebracht zoals hoger beschreven, en de oligomeerfractie werd gedestilleerd uit de gedeeltelijk gekraakte vloeibare fractie. De oligomeerfractie bevatte styreendimeren en -trimeren met enkele vluchtige  
10 producten (waaronder styreen, toluen, ethylbenzeen, cumeen en alfa-methylstyreen) die nog steeds aanwezig waren in de gedestilleerde oligomeerfractie.

1 kg van die oligomeerfractie werd toegevoerd in een reactor. De oligomeerfractie had een viscositeit tussen 10 en 30 cP in normale omstandigheden. Het systeem werd onder druk gezet in de reactor met  
15 stikstofgas en werd verwarmd om de oligomeren verder te kraken. De toegepaste drukwaarden en temperaturen zijn aangegeven in Tabel 3. Wanneer de aangegeven temperatuur was bereikt, werd na 15 en na 30 minuten een monster van het geproduceerde gasvormige product genomen. De gemiddelde samenstellingen van die twee monsters, en van  
20 de samenstelling van de aanvankelijke oligomeerfractie, zijn aangegeven in Tabel 3.



**Tabel 3:** Kraakomstandigheden en samenstellingen (in gew.-%) van de aanvankelijke oligomeerfractie en van de gasvormige kraakproducten die werden verkregen in fase 2 van het kraakproces.

	Oligomeer fractie	Test 12	Test 13	Test 14	Test 15	Test 16
<b>Kraakomstandigheden</b>						
Temp. (°C)	-	550	500	550	400	500
Druk (bara)	-	0,02	5	5	10	10
<b>Samenstelling kraakproduct</b>						
Totale vluchtige stoffen	6,9	10,8	34,7	26,1	68,3	34,8
Dimeren	29,5	39,4	22,6	17,4	14,2	24,7
Trimeren	18,9	15,3	4,3	8,4	2,1	3,7
Som dimeren en trimeren	48,4	54,7	26,9	25,8	16,4	28,4
<b>Samenstelling van de vluchtige fractie</b>						
Benzeen	0,0	0,0	0,1	0,7	0,4	0,2
Tolueen	0,1	0,0	9,8	7,8	17,0	11,0
Ethylbenzeen	0,2	0,4	10,8	6,6	17,7	11,4
Styreen	3,7	5,3	3,9	2,2	15,3	3,6
Cumeen	0,1	0,2	4,9	2,0	10,8	3,0
Alfa-methylstyreen	2,6	3,8	2,9	1,1	4,0	0,6

5 De verschillende hoeveelheden werden bepaald door middel van GC-FID. Een aantal verbindingen konden niet worden gemeten met behulp van die techniek, in het bijzonder de hogere oligomeren, waardoor het totale percentage niet gelijk is aan 100%.

10 Wanneer werd gekraakt onder vacuümomstandigheden (zie Test 12) werden vrijwel geen vluchtige stoffen geproduceerd door de pyrolyse reactie. Het gehalte aan trimeren was iets lager, maar als gevolg daarvan nam het gehalte aan dimeren toe.

15 Het verhogen van de druk tot 5 bara maakte het mogelijk om, bij een temperatuur van 500°C, het gehalte aan dimeren en het gehalte aan trimeren te verlagen en meer vluchtige stoffen te produceren (zie Test

13). Een toename van de temperatuur tot 550°C resulteerde bij deze druk in een lager gehalte aan vluchtige stoffen en in een lager gehalte aan dimeren (zie Test 14). Het gehalte aan trimeren nam echter weer toe.

5 Tijdens de tweede pyrolysefase kon de dimeer-/trimeerfractie ongeveer 50% worden verlaagd bij een druk van 5 bara en konden waardevolle vluchtige stoffen worden geproduceerd, in het bijzonder toluen, ethylbenzeen en cumeen. De vluchtige fractie bevatte ook een hoeveelheid styreen en alfa-methylstyreen. De vluchtige stoffen bevatten een hoeveelheid styreen en alfa-methylstyreen die vergelijkbaar was met  
10 de hoeveelheid styreen en alfa-methylstyreen die reeds aanwezig was in de oligomeerfractie na de eerste pyrolysefase, zodat de tweede pyrolysefase blijkbaar eerder andere vluchtige verbindingen produceerde dan styreen en alfa-methylstyreen.

15 In tests 15 en 16 werd telkens een hogere druk toegepast tijdens de tweede pyrolysefase. Bij een temperatuur van 500°C (zie test 16) bleef de totale hoeveelheid vluchtige stoffen en de totale hoeveelheid dimeren en trimeren nagenoeg gelijk wanneer de druk werd verhoogd van 5 tot 10 bara. De combinatie van een hogere druk en een lagere temperatuur (zie test 15) resulteerde echter in een veel grotere  
20 hoeveelheid totale vluchtige stoffen en een veel lager oligomeergehalte. Het verhogen van de druk van 5 tot 10 bara en het tegelijkertijd verlagen van de temperatuur van 500 tot 400°C verdubbelde de hoeveelheid vluchtige stoffen en verlaagde het oligomeergehalte met bijna 50.

25 Een gasdruk van 10 bara en temperaturen van 400 tot 450°C maakten het mogelijk om beduidend meer van de styreendimeren en -trimeren te kraken, namelijk ongeveer 70% daarvan. Het vluchtige product dat werd geproduceerd onder die omstandigheden bestond voornamelijk uit ethylbenzeen, toluen, cumeen, alfa-methylstyreen en styreen. De hoeveelheid styreen nam in dat geval ook aanzienlijk toe. Een

hogere druk, bijvoorbeeld een druk van 15 bara, zal het mogelijk maken om nog meer van de styreendimeren en -trimeren te kraken.

5 Bijkomende tests werden uitgevoerd met andere temperaturen en drukwaarden en met een andere oligomeerfractie. Deze tests werden uitgevoerd om het effect van de druk na te gaan op de opbrengst aan de pyrolyseproducten met laag moleculair gewicht, d.w.z. op de opbrengst aan totale vluchtige stoffen. De resultaten van deze tests zijn aangegeven in Tabel 4.

10 **Tabel 4:** Kraakomstandigheden en samenstellingen (in gew.-%) van de gasvormige kraakproducten die werden verkregen in fase 2 van het kraakproces.

	Test 17	Test 18	Test 19	Test 20	Test 21	Test 22
<b>Kraakomstandigheden</b>						
Temp. (°C)	425	425	425	500	500	500
Druk (bara)	4	6	11	4	6	11
<b>Samenstelling kraakproduct</b>						
Totale vluchtige stoffen	34,5	35,8	42,3	19,3	19,6	24,8
Dimeren	27,1	18,8	15,0	24,7	25,1	26,5
Trimeren	1,1	2,3	2,3	9,0	8,4	8,3
Som dimeren en trimeren	28,2	21,1	17,3	33,7	33,5	34,8
<b>Samenstelling van de vluchtige fractie</b>						
Benzeen	0,1	0,2	0,3	0,3	0,3	0,3
Tolueen	12,1	13,0	16,0	5,6	7,0	8,1
Ethylbenzeen	12,1	14,2	17,5	5,3	6,7	8,2
Styreen	0,7	0,1	0,0	0,4	0,3	0,0
Cumeen	3,7	4,3	5,0	1,2	1,4	1,8
Alfa-methylstyreen	1,2	0,7	0,5	0,2	0,2	0,0

15 De vluchtige stoffen omvatten ook een aantal ongeïdentificeerde vluchtige stoffen.

De opbrengst aan totale vluchtige stoffen van tests 12 tot 22 is aangegeven in Figuur 2.

In Tabel 4 is te zien dat, vooral bij lagere temperaturen, een toename van de druk de hoeveelheid dimeren en trimeren verlaagde en de hoeveelheid totale vluchtige stoffen verhoogde.

Het gehalte aan styreenmonomeer was telkens zeer laag. Mogelijk komt dat doordat het gasvormige product slechts vrij traag wordt afgekoeld tijdens het condensatieproces in drie stappen. Tijdens die condensatiefase kunnen de monomeren met laag moleculaire gewicht onstabiel zijn en polymeriseren om nieuwe oligomeren te vormen. Bijgevolg valt te verwachten dat wanneer het gasvormige product wordt geblust in plaats van het vrij traag te condenseren, meer styreenmonomeer en andere vluchtige stoffen zullen worden geproduceerd en minder oligomeren.

Wat het totale gehalte aan vluchtige stoffen betreft, d.w.z. de hoeveelheid van pyrolyseproducten met laag moleculair gewicht, is in Figuur 2 te zien dat afhankelijk van de temperatuur in de tweede pyrolyse reactor de druk daarin hoog genoeg dient te zijn, en in het bijzonder hoger dient te zijn dan de minimumdruk bepaald door Vergelijking 1.

Het totale gehalte aan vluchtige stoffen dat werd verkregen in test 12 (550°C; 0,02 bara) was inderdaad zeer laag. Door het verhogen van de druk tot 5 bara (test 14) nam het totale gehalte aan vluchtige stoffen toe van 10,8% tot 26,1%. Wanneer de temperatuur werd verlaagd tot 500°C terwijl de druk op 5 bara werd gehandhaafd (test 13) nam de totale opbrengst aan vluchtige stoffen verder toe tot 34,7%.

In de reeks tests 17 tot 19 en 20 tot 22 is te zien dat wanneer de druk wordt verhoogd, de opbrengst aan totale vluchtige stoffen altijd toeneemt. Die opbrengst was opnieuw hoger voor de tests die werden

uitgevoerd bij lagere temperatuur (425°C) dan voor de tests die werden uitgevoerd bij een hogere temperatuur (500°C).

## **CONCLUSIES**

1. Werkwijze voor het recupereren van ten minste styreenmonomeer uit een kunststofmateriaal dat ten minste één styreenhoudend polymeer bevat, waarbij de werkwijze de volgende stappen omvat:
- 5
- het verwarmen van het kunststofmateriaal in een eerste pyrolysereactor (9) tot een eerste temperatuur waarop het kunststofmateriaal zich in gesmolten toestand bevindt;
  - het kraken van het genoemde styreenhoudende polymeer op de  
10 genoemde eerste temperatuur, bij een eerste gasdruk, in de genoemde eerste pyrolysereactor (9) om een eerste product te produceren dat styreenmonomeer en styreenoligomeren bevat en dat gasvormig is bij de genoemde eerste temperatuur en de genoemde eerste gasdruk, waarbij het genoemde eerste product een eerste  
15 gasfase (12) vormt in de eerste pyrolysereactor (9) en het gesmolten kunststofmateriaal dat daarin wordt gekraakt een eerste vloeibare fase (10);
  - het verwijderen van het eerste product tijdens de productie ervan uit de eerste pyrolysereactor (9);
  - het scheiden van het eerste product dat is verwijderd uit de genoemde  
20 eerste pyrolysereactor (9) in een eerste lichtere fractie, die ten minste een deel van het genoemde styreenmonomeer bevat, en in een eerste zwaardere fractie, die ten minste een deel van de genoemde styreenoligomeren bevat; en
  - het aanvoeren van de genoemde eerste zwaardere fractie naar een  
25 tweede pyrolysereactor (38) waarbij de genoemde styreenoligomeren worden gekraakt op een tweede temperatuur, bij een tweede gasdruk die hoger is dan de genoemde eerste gasdruk, om een tweede product te produceren dat alfa-methylstyreen, cumeen, styreenmonomeer,  
30 ethylbenzeen en/of toluen bevat en dat gasvormig is bij de genoemde

tweede gasdruk en de genoemde tweede temperatuur, waarbij het tweede product wordt verwijderd uit de tweede pyrolyse reactor (38) tijdens de productie ervan,

met het kenmerk dat

5 de genoemde eerste gasdruk lager is dan 1,0 bara, de genoemde tweede gasdruk hoger is dan 1,0 bara en de genoemde tweede temperatuur lager is dan 650°C.

2. De werkwijze volgens conclusie 1, met het kenmerk dat het tweede product dat is verwijderd uit de tweede pyrolyse reactor (38) 10 wordt gescheiden in een tweede lichtere fractie die het genoemde alfa-methylstyreen, cumeen, styreenmonomeer, ethylbenzeen en/of toluen bevat en in ten minste één tweede zwaardere fractie die styreenoligomeren bevat.

3. De werkwijze volgens conclusie 2, met het kenmerk dat de 15 genoemde tweede zwaardere fractie wordt gerecirculeerd naar de genoemde tweede pyrolyse reactor (38).

4. De werkwijze volgens om het even welke van de conclusies 1 tot, met het kenmerk dat de genoemde eerste gasdruk lager is dan 0,5 bara, bij voorkeur lager dan 0,3 bara, meer bij voorkeur lager 20 dan 0,1 bara en meest bij voorkeur lager dan 0,06 bara.

5. De werkwijze volgens om het even welke van de conclusies 1 tot 4, met het kenmerk dat de genoemde eerste temperatuur hoger is dan 300°C, bij voorkeur hoger dan 400°C, meer bij voorkeur hoger dan 450°C en meest bij voorkeur hoger dan 475°C.

25 6. De werkwijze volgens om het even welke van de conclusies 1 tot 5, met het kenmerk dat de genoemde eerste temperatuur lager is dan 650°C, bij voorkeur lager dan 625°C, meer bij voorkeur lager dan 600°C en meest bij voorkeur lager dan 575°C.

30 7. De werkwijze volgens om het even welke van de conclusies 1 tot 6, met het kenmerk dat de genoemde tweede gasdruk

hoger is dan 4 bara, bij voorkeur hoger dan 8 bara en meest bij voorkeur hoger dan 12 bara.

5 8. De werkwijze volgens om het even welke van de conclusies 1 tot 7, met het kenmerk dat de genoemde tweede gasdruk hoger is dan of gelijk is aan een minimale gasdruk  $P_{min}$  die wordt gedefinieerd door de volgende Vergelijking 1:

$$P_{min} = 2,8 \cdot 10^{-12} T^{4,4}$$

waarbij:

10  $P_{min}$  staat voor de minimale tweede gasdruk, in bara, in de tweede reactor, en

$T$  staat voor de tweede temperatuur, in graden Celsius, in de tweede reactor.

15 9. De werkwijze volgens om het even welke van de conclusies 1 tot 8, met het kenmerk dat de genoemde tweede gasdruk lager is dan 30 bara en bij voorkeur lager dan 25 bara.

10. De werkwijze volgens om het even welke van de conclusies 1 tot 9, met het kenmerk dat de genoemde tweede temperatuur lager is dan 600°C, bij voorkeur lager dan 550°C, meer bij voorkeur lager dan 500°C en meest bij voorkeur lager dan 450°C.

20 11. De werkwijze volgens om het even welke van de conclusies 1 tot 10, met het kenmerk dat de genoemde tweede temperatuur hoger is dan 300°C, bij voorkeur hoger dan 350°C, of hoger dan 375°C of hoger dan 400°C.

25 12. De werkwijze volgens om het even welke van de conclusies 1 tot 11, met het kenmerk dat de genoemde eerste pyrolyse reactor (9) en de genoemde tweede pyrolyse reactor (38) worden bedreven volgens een continu proces.

13. De werkwijze volgens om het even welke van de conclusies 1 tot 12, met het kenmerk dat ze de volgende stappen omvat:



- het toevoeren van een gedeelte van de genoemde eerste vloeibare fase (10) uit de genoemde eerste pyrolyse reactor (9) naar een derde pyrolyse reactor (51);
- het kraken van het genoemde gedeelte van de genoemde eerste vloeibare fase (10) op een derde temperatuur, bij een derde gasdruk, in de genoemde derde pyrolyse reactor (51) om een derde product te produceren dat styreenmonomeer en styreenoligomeren bevat en dat gasvormig is bij de genoemde derde temperatuur en de genoemde derde gasdruk, waarbij het genoemde derde product een derde gasfase (55) vormt in de derde pyrolyse reactor (51) en het genoemde gedeelte van de genoemde eerste vloeibare fase (10) dat daarin wordt gekraakt een derde vloeibare fase (53); en
- het verwijderen van het derde product uit de derde pyrolyse reactor (51) tijdens de productie ervan.

15                    14. De werkwijze volgens conclusie 13, met het kenmerk dat ze de stap omvat van het toevoegen van het derde product dat is verwijderd uit de genoemde derde pyrolyse reactor (51) aan het eerste product dat is verwijderd uit de genoemde eerste pyrolyse reactor (9) en het vervolgens scheiden van het eerste en het derde product in de  
20                    genoemde eerste lichtere fractie en in de genoemde eerste zwaardere fractie.

                         15. De werkwijze volgens conclusie 13 of 14, met het kenmerk dat de genoemde derde gasdruk lager is dan 10,0 bara, bij voorkeur lager dan 7,0 bara en meer bij voorkeur lager dan 4,0 bara.

25                    16. De werkwijze volgens om het even welke van de conclusies 13 tot 15, met het kenmerk dat de genoemde derde temperatuur hoger is dan 300°C, bij voorkeur hoger dan 400°C, meer bij voorkeur hoger dan 450°C en meest bij voorkeur hoger dan 475°C.

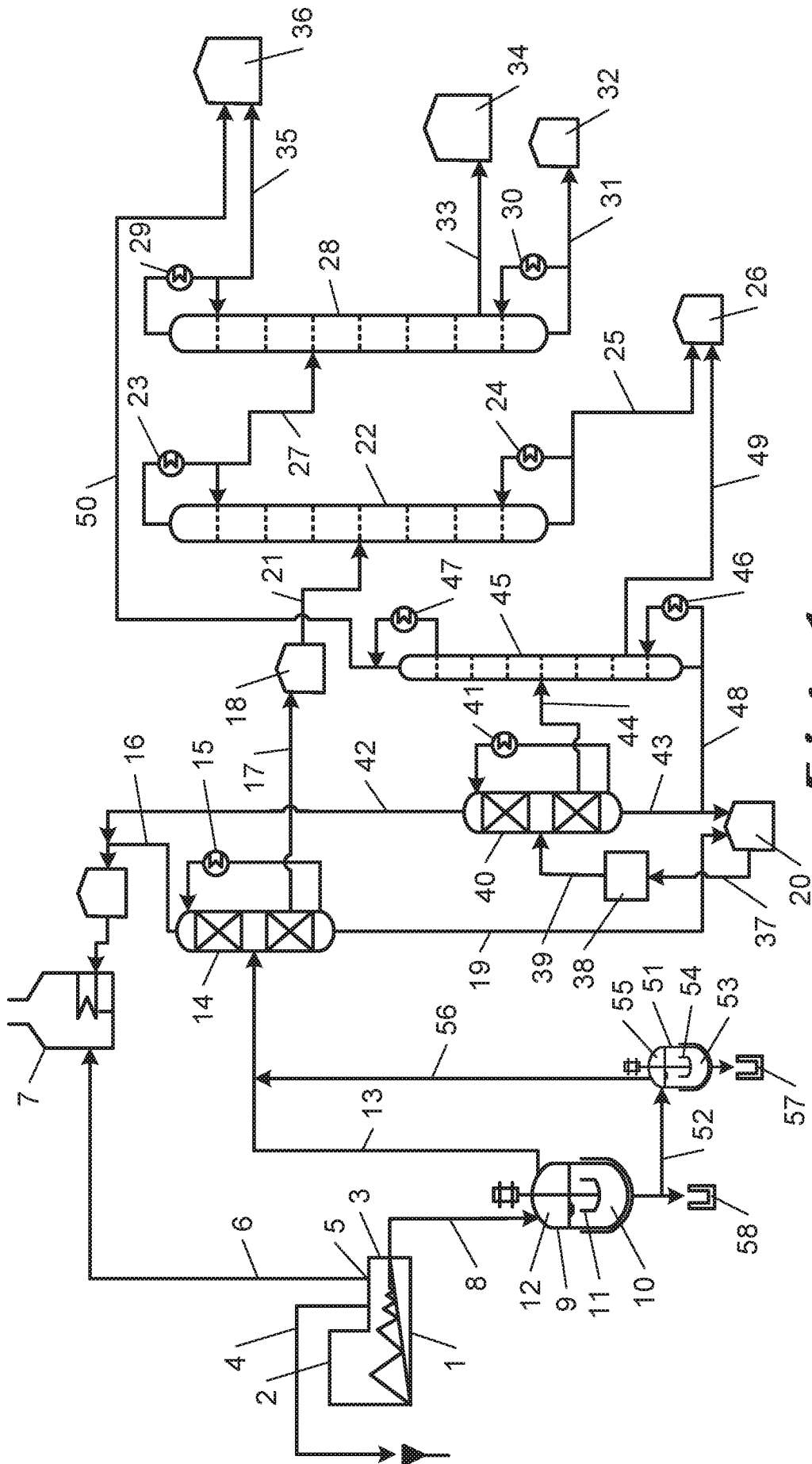
30                    17. De werkwijze volgens om het even welke van de conclusies 13 tot 16, met het kenmerk dat de genoemde derde

temperatuur lager is dan 650°C, bij voorkeur lager dan 625°C, meer bij voorkeur lager dan 600°C en meest bij voorkeur lager dan 575°C.

5 18. De werkwijze volgens om het even welke van de conclusies 1 tot 17, met het kenmerk dat de genoemde tweede pyrolyse reactor (38) verschilt van de genoemde eerste pyrolyse reactor (9).

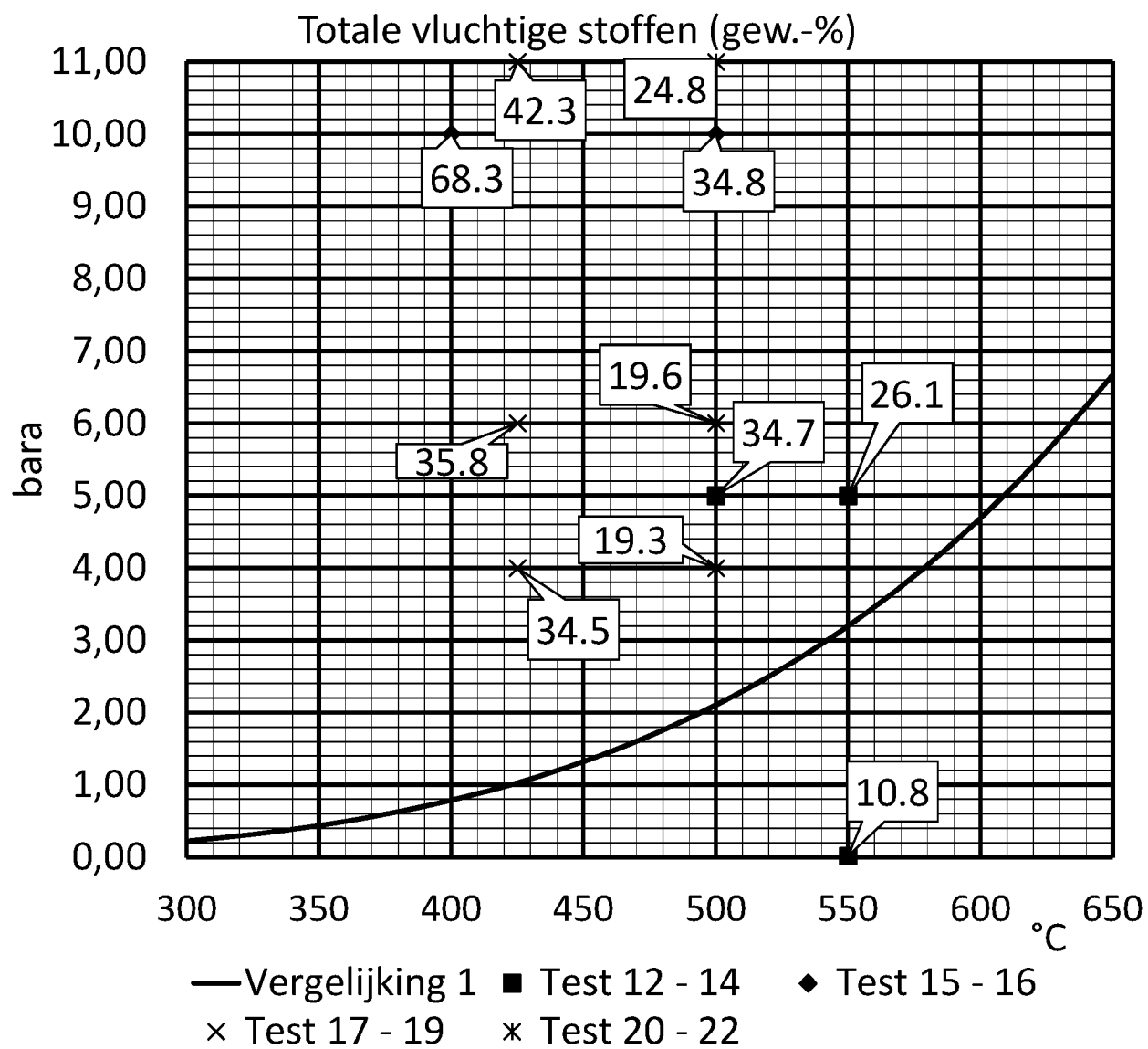
10 19. De werkwijze volgens om het even welke van de conclusies 1 tot 17, met het kenmerk dat de genoemde tweede pyrolyse reactor dezelfde is als de genoemde eerste pyrolyse reactor (9), waarbij de genoemde eerste zwaardere fractie wordt toegevoerd in de genoemde eerste pyrolyse reactor (9) nadat is gestopt met het daarin produceren van het genoemde eerste product.

15 20. De werkwijze volgens om het even welke van de conclusies 1 tot 19, met het kenmerk dat het genoemde kunststofmateriaal een consumptieafvalmateriaal is, in het bijzonder afvalmateriaal dat afkomstig is van huis-aan-huisvuilnisophaling.



**Fig. 1**

2/2

*Fig. 2*

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

(PCT Article 18 and Rules 43 and 44)

Applicant's or agent's file reference 2544504PC00-JV	<b>FOR FURTHER ACTION</b> see Form PCT/ISA/220 as well as, where applicable, item 5 below.	
International application No. PCT/EP2021/056265	International filing date ( <i>day/month/year</i> ) 11 March 2021 (11-03-2021)	(Earliest) Priority Date ( <i>day/month/year</i> ) 13 March 2020 (13-03-2020)
Applicant  INDAVER		

This international search report has been prepared by this International Searching Authority and is transmitted to the applicant according to Article 18. A copy is being transmitted to the International Bureau.

This international search report consists of a total of 3 sheets.

It is also accompanied by a copy of each prior art document cited in this report.

1. **Basis of the report**

a. With regard to the **language**, the international search was carried out on the basis of:

- the international application in the language in which it was filed  
 a translation of the international application into \_\_\_\_\_, which is the language of a translation furnished for the purposes of international search (Rules 12.3(a) and 23.1(b))

b.  This international search report has been established taking into account the **rectification of an obvious mistake** authorized by or notified to this Authority under Rule 91 (Rule 43.6**bis**(a)).

c.  With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, see Box No. I.

2.  **Certain claims were found unsearchable** (See Box No. II)

3.  **Unity of invention is lacking** (see Box No III)

4. With regard to the **title**,

- the text is approved as submitted by the applicant  
 the text has been established by this Authority to read as follows:

5. With regard to the **abstract**,

- the text is approved as submitted by the applicant  
 the text has been established, according to Rule 38.2, by this Authority as it appears in Box No. IV. The applicant may, within one month from the date of mailing of this international search report, submit comments to this Authority

6. With regard to the **drawings**,

a. the figure of the **drawings** to be published with the abstract is Figure No. 1

- as suggested by the applicant  
 as selected by this Authority, because the applicant failed to suggest a figure  
 as selected by this Authority, because this figure better characterizes the invention

b.  none of the figures is to be published with the abstract

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No  
PCT/EP2021/056265

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER					
INV.	C07C4/22	C07C15/46	C07C4/04	C07C15/06	C07C15/073
	C07C15/085	C07C15/44	C08J11/12	C10G9/00	C10G1/00
	C10G1/10				
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) C07C C08J C10G
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) EPO-Internal, WPI Data
--

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2003 267896 A (TOSHIBA PLANT KENSETSU CO LTD) 25 September 2003 (2003-09-25) cited in the application	1-6,9-20
A	figure 2; examples 1,2 paragraphs [0007], [0009] paragraph [0046] paragraphs [0034] - [0036] -----	7,8

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	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"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
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&" document member of the same patent family
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 10 May 2021	Date of mailing of the international search report 19/05/2021
--	--

Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer Kardinal, Siegmar
--	---

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2021/056265

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
JP 2003267896 A	25-09-2003	JP 4161293 B2	08-10-2008
		JP 2003267896 A	25-09-2003
-----			

**Information on Search Strategy - Pilot phase (see OJ 2015, A86)**

The type of information contained in this sheet may change during the pilot for improving the usefulness of this new service.

Application Number

PCT/EP2021/056265

TITLE: PROCESS FOR RECOVERING STYRENE MONOMER FROM A STYRENE-CONTAINING POLYMER

APPLICANT: INDAVER

IPC CLASSIFICATION: C07C4/22, C07C15/46, C07C4/04, C07C15/06, C07C15/073, C07C15/085, C07C15/44, C08J11/12, C10G9/00, C10G1/00, C10G1/10

EXAMINER: Kardinal, Siegmar

CONSULTED DATABASES: EPODOC, WPI

CLASSIFICATION SYMBOLS DEFINING EXTENT OF THE SEARCH:

IPC:

CPC: 1- C07C4/22, C07C15/46, 2- C07C4/04, C07C15/073, 3- C07C4/04, C07C15/06, 4- C07C4/04, C07C15/085, 5- C07C4/04, C07C15/44, C07C4/04, C07C4/22, C08J11/12, C08J2325/06, C10G9/00

FI/F-TERMS:

KEYWORDS OR OTHER ELEMENTS FEATURING THE INVENTION:

Recovering styrene monomer from a plastic material which contains styrene-containing polymer(s) comprising cracking at a first temperature at which the plastic material is in a molten state, at a first gas pressure (<1 bara, e.g. <= 0.06 bara) in a first pyrolysis reactor to produce a first gaseous product phase which contains styrene monomer and styrene oligomers and the molten plastic material as a first liquid phase; removing the first gaseous product during the production thereof from the first pyrolysis reactor; and separating it into a first lighter fraction containing at least part of said styrene monomer and a first heavier fraction containing at least part of said styrene oligomers which is fed to a second pyrolysis reactor and cracked at a second temperature (<650 °C) and a gas pressure higher than the first gas pressure (>1 bara, e.g. 5 bara), to produce and remove a second gaseous product containing alpha-methyl-styrene, cumene, styrene monomer, ethyl-benzene and/or toluene



# PATENT COOPERATION TREATY

From the  
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

# PCT

## WRITTEN OPINION OF THE INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY (PCT Rule 43bis.1)

To:

see form PCT/ISA/220

Date of mailing  
(day/month/year) see form PCT/ISA/210 (second sheet)

Applicant's or agent's file reference  
see form PCT/ISA/220

**FOR FURTHER ACTION**  
See paragraph 2 below

International application No.  
PCT/EP2021/056265

International filing date (day/month/year)  
11.03.2021

Priority date (day/month/year)  
13.03.2020

International Patent Classification (IPC) or both national classification and IPC  
INV. C07C4/22 C07C15/46 C07C4/04 C07C15/06 C07C15/073 C07C15/085 C07C15/44 C08J11/12 C10G9/00  
C10G1/00 C10G1/10

Applicant  
INDAVER

1. This opinion contains indications relating to the following items:

- Box No. I Basis of the opinion
- Box No. II Priority
- Box No. III Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- Box No. IV Lack of unity of invention
- Box No. V Reasoned statement under Rule 43bis.1(a)(i) with regard to novelty, inventive step and industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- Box No. VI Certain documents cited
- Box No. VII Certain defects in the international application
- Box No. VIII Certain observations on the international application


2. **FURTHER ACTION**

If a demand for international preliminary examination is made, this opinion will usually be considered to be a written opinion of the International Preliminary Examining Authority ("IPEA") except that this does not apply where the applicant chooses an Authority other than this one to be the IPEA and the chosen IPEA has notified the International Bureau under Rule 66.1bis(b) that written opinions of this International Searching Authority will not be so considered.

If this opinion is, as provided above, considered to be a written opinion of the IPEA, the applicant is invited to submit to the IPEA a written reply together, where appropriate, with amendments, before the expiration of 3 months from the date of mailing of Form PCT/ISA/220 or before the expiration of 22 months from the priority date, whichever expires later.

For further options, see Form PCT/ISA/220.

Name and mailing address of the ISA:



European Patent Office  
P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL-2280 HV Rijswijk - Pays Bas  
Tel. +31 70 340 - 2040  
Fax: +31 70 340 - 3016


Date of completion of  
this opinion

see form  
PCT/ISA/210

Authorized Officer

Kardinal, Siegmar

Telephone No. +31 70 340-0



---

**Box No. I Basis of the opinion**

---

1. With regard to the **language**, this opinion has been established on the basis of:
  - the international application in the language in which it was filed.
  - a translation of the international application into , which is the language of a translation furnished for the purposes of international search (Rules 12.3(a) and 23.1 (b)).
2.  This opinion has been established taking into account the **rectification of an obvious mistake** authorized by or notified to this Authority under Rule 91 (Rule 43bis.1(a))
3.  With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, this opinion has been established on the basis of a sequence listing:
  - a.  forming part of the international application as filed:
    - in the form of an Annex C/ST.25 text file.
    - on paper or in the form of an image file.
  - b.  furnished together with the international application under PCT Rule 13ter.1(a) for the purposes of international search only in the form of an Annex C/ST.25 text file.
  - c.  furnished subsequent to the international filing date for the purposes of international search only:
    - in the form of an Annex C/ST.25 text file (Rule 13ter.1(a)).
    - on paper or in the form of an image file (Rule 13ter.1(b) and Administrative Instructions, Section 713).
4.  In addition, in the case that more than one version or copy of a sequence listing has been filed or furnished, the required statements that the information in the subsequent or additional copies is identical to that forming part of the application as filed or does not go beyond the application as filed, as appropriate, were furnished.
5. Additional comments:

---

**Box No. V Reasoned statement under Rule 43bis.1(a)(i) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**

---

1. Statement

Novelty (N)	Yes: Claims	<u>1-20</u>
	No: Claims	
Inventive step (IS)	Yes: Claims	<u>7, 8</u>
	No: Claims	<u>1-6, 9-20</u>
Industrial applicability (IA)	Yes: Claims	<u>1-20</u>
	No: Claims	

2. Citations and explanations

**see separate sheet**

**Re Item V**

Reference is made to the following document:

D1 JP 2003 267896 A (TOSHIBA PLANT KENSETSU CO LTD) 25 September 2003 (a machine translation D1T is enclosed)

1 Novelty (Article 33(2) PCT)

Remark: paragraphs cited in the following refer to the paragraphs of D1T.

D1 discloses (cf. examples 1, 2 and figure 2) a continuous process for recovering at least styrene monomer from a plastic material which contains at least one styrene-containing polymer. The process of D1 comprises:

- Heating the plastic material in a first pyrolysis reactor **2** of thermal decomposition apparatus **1** to a first temperature (500 °C to 700 °C) at which the plastic material is in a molten state.
- Cracking said styrene-containing polymer at said first temperature, at a first gas pressure (50 torr), in said first pyrolysis reactor **2** to produce a first product which contains styrene monomer and styrene oligomers and which is gaseous at said first temperature and said first gas pressure, said first product forming a first gaseous phase (gaseous phase in reactor **2**) in the first pyrolysis reactor **2** and the molten plastic material which is being cracked therein forming a first liquid phase (liquid phase in reactor **2**).
- Removing the first product (gaseous decomposition product which flows out from outlet **5** into line **c**) during the production thereof from the first pyrolysis reactor **2**.
- Separating (columns **14**, **16**) the first product which is removed from said first pyrolysis reactor **2** into a first lighter fraction **22** which contains at least part of said styrene monomer and in a first heavier fraction (**17**, **h**). It is known (cf. [0007]) that thermally decomposing a polystyrene produces styrene dimer and styrene trimer as by-products. According to [0009] the decomposition product is separated into a light product comprising toluene, the styrene monomer, and a heavy oil. The heavier fraction (**17**, **h**) thus contains the styrene dimer and trimer, *i.e.* at least part of said styrene oligomers.
- Feeding said first heavier fraction (lines **h**, **k**) to a second pyrolysis reactor **2** of a second thermal decomposition apparatus **30** wherein said styrene oligomers are cracked at a second temperature (700 °C, cf. example 2), at a second gas pressure (normal pressure) which is higher than said first

gas pressure, to produce a second product. The second product (gaseous decomposition product withdrawn through outlet **5**) is gaseous at said second gas pressure and said second temperature. It is removed from the second pyrolysis reactor **2** of a second thermal decomposition apparatus **30** during the production thereof. D1 discloses (cf. [0007]) that thermally decomposing a polystyrene produces styrene dimer, a styrene trimer, toluene, ethylbenzene, and (alpha)methylstyrene by-product besides a styrene monomer. These product are thus also formed in the second thermal decomposition apparatus **30**.

Hence, D1 discloses a process wherein

- said first gas pressure is lower than 1.0 bara (50 torr) and
- said second gas pressure is higher than 1.0 bara ("normal pressure" is deemed to be slightly higher than 1 bara).

The differentiating feature of present claim 1 is therefore that "said second temperature is lower than 650°C". A temperature of 700 °C is disclosed in example 2 of D1.

The subject-matter of independent claim 1 and dependent claims 2 to 20 is therefore novel.

## 2 Inventive step (Article 33(3) PCT)

### 2.1 Document D1 represents the closest prior art and starting point of the problem-and-solution approach.

The sole differentiating feature of the process of present claim 1 over the known process of D1 is a lower temperature in the second pyrolysis step (lower than 650 °C vs 700 °C, see above).

A technical effect of this sole differentiating feature is not substantiated. The present application contains examples which are to show that the combination of a lower temperature and an increased pressure in the second pyrolysis step allows increasing the total amount of volatiles. However, there is not data to support a technical effect of the sole differentiating feature (somewhat lower temperature). Accordingly, no technical effect can be taken into account when formulating the objective technical problem. The objective technical problem is the provision of an alternative process for recovering at least styrene monomer from a plastic material.

D1 already teaches (cf. [0046]) that there exists an advantage in installing a second pyrolysis reactor **2** in that the thermal decomposition conditions of a polystyrene and the thermal decomposition conditions of a heavy oil can be set up independently. For example, the ways which thermally decompose a polystyrene in a pressure-reduction state decrease in number the production ratio of a by-product. However, since the way thermally decomposed by the normal pressure can lengthen the residence time of thermal decomposition, it is easy to decompose a heavy oil completely. Hence, D1 teaches an advantage of using optimised conditions in the first and second pyrolysis reactor including a higher pressure in the second pyrolysis reactor. The skilled person would routinely optimize these conditions in order to provide alternative processes. This includes reducing the temperature in the second pyrolysis step from 700 °C to less than 650 °C. The skilled person would routinely work within the temperature range suggested in D1 for the first pyrolysis step, i.e. 500 °C to 700 °C (cf. [0034]) and arrive at the subject-matter of present claim 1 without inventive contribution. For providing a mere alternative process no specific incentive is required, the expectation of success is given.

2.2 It appears that the situation is different for a process according to either present claim 7 or present claim 8.

Claim 7 requires that "said second gas pressure is higher than 4 bara". This value is substantially higher than the normal pressure applied in D1. It appears credible that an effect as shown in the present examples (increased total amount of volatiles) can be achieved.

Similarly, claim 8 requires that said second gas pressure is higher than or equal to a minimum gas pressure  $P_{\min}$  which is calculated as a function of the second temperature (the curve is shown in figure 2 of the present application). Hereby it is noted that the second gas pressure should always be higher than 1 bara, also for the lower temperatures in the second reactor, in particular for the temperatures lower than about 422°C since, according to the equation of claim 8, this temperature corresponds to a pressure of 1.0 bara (see page 19 of the present application). D1 does not disclose or suggest such a temperature dependent minimum pressure in the second pyrolysis step, and again a technical effect appears to be credibly shown.

Hence, it appears that a combination of present claims 1 and 7, or, alternatively, a combination of present claims 1 and 8 is neither known from, nor rendered obvious by, the available prior art. It is noted that this suggestion is only for assisting the applicant in his decision on how to proceed. It in no way precludes

consideration of alternative solutions submitted by the applicant. The responsibility for determining the text of the application and in particular for defining the subject-matter for which protection is sought remains with the applicant.

- 2.3 The other dependent claims appear to contain features which are already disclosed in or rendered obvious by the prior art. Concerning claims 2-3, D1 discloses that the second product is removed from the second pyrolysis reactor **2** through outlet **5** via line **l** and introduced into line **c**. The second product is thus separated along with the first product in a second lighter fraction (low boiling point component **e** which comprises at least toluene) and in at least one second heavier fraction **f** which contains styrene oligomers. These oligomers are eventually recycled to the second pyrolysis reactor **2**. This configuration is deemed to be encompassed by the open wording of the present claims. Installing a third pyrolysis reactor according to claim 13 is not considered to be based on an inventive step. The skilled person would regard it as routine work to replace the first pyrolysis reactor 2 of D1 by two reactors connected in series and would apply the conditions and workup already disclosed in D1. For the provision of a mere alternative process, no specific motivation is required and the skilled person would expect to solve the technical problem. The same holds for the embodiments of claim 14 to 20.

Hence, dependent claims 2 to 6 and 9 to 20 do not appear to contain any additional features which, in combination with the features of any claim to which they refer, meet the requirements of the PCT with respect to inventive step.

## INTERNATIONAAL VERSLAG VAN NIEUWHEIDSONDERZOEK

(PCT Artikel 18 en Regels 43 en 44)

Referentie aanvrager of vertegenwoordiger 2544504PCOO-JV	<b>VOOR VERDERE ACTIE</b> zie formulier PCT/ISA/220 evenals, waar van toepassing, item 5 hieronder.	
Internationaal octrooiaanvraag no. PCT/EP2021/056265	Internationale indieningsdatum (dag/maand/jaar) 11 maart 2021 (11-03-2021)	(Eerste) prioriteitsdatum (dag/maand/jaar) 13 maart 2020 (13-03-2020)
Aanvrager  INDAVER		

Dit Internationaal verslag van nieuwheidsonderzoek werd voorbereid door de Internationale onderzoeksafdeling en werd overgemaakt aan de aanvrager in overeenstemming met Artikel 18. Een kopie werd overgemaakt aan het Internationale Bureau.

Dit Internationale verslag van nieuwheidsonderzoek bestaat uit een totaal van 3 pagina's.

Het wordt ook vergezeld van een kopie van elk prioriteitsdocument dat geciteerd wordt in dit verslag

1. **Basis van het verslag**

a. Het Internationale nieuwheidsonderzoek werd, met betrekking tot de **taal**, uitgevoerd op basis van:

- de Internationale aanvraag in de taal van indiening
- een vertaling van de Internationale octrooiaanvraag in het \_\_\_\_\_, wat de taal is van een vertaling die aangereikt werd met als doel het Internationale nieuwheidsonderzoek uit te voeren (Regels 12.3 (a) en 23.1 (b))

b.  Dit verslag van nieuwheidsonderzoek werd opgemaakt rekening houdend met de **rechtzetting van een duidelijke fout** die toegestaan werd door of ter kennis gebracht werd aan deze Autoriteit krachtens Regel 91 (Regel 43.6 bis (a)).

c.  Met betrekking tot elke nucleotide- en/of aminozuursequentie zoals beschreven in de Internationale aanvraag, zie kader nr. I

2.  **Bepaalde conclusies werden als niet-opzoekbaar bevonden** (Zie kader nr. II)

3.  **Eenheid van uitvinding ontbreekt** (zie kader nr. III)

4. Met betrekking tot de **titel**,

- De tekst werd goedgekeurd zoals ingediend door de aanvrager
- De tekst werd door deze Autoriteit opgesteld om als volgt gelezen te worden:

5. Met betrekking tot het **uittreksel**,

- De tekst werd goedgekeurd zoals ingediend door de aanvrager
- De tekst werd opgesteld, overeenkomstig Regel 38.2, door deze Autoriteit zoals vermeld in kader nr. IV. De aanvrager kan binnen een maand na de datum van verzending van dit Internationale verslag van nieuwheidsonderzoek opmerkingen indienen bij deze Autoriteit

6. Met betrekking tot de **figuren**,

a. De **figuur** die samen met het abstract gepubliceerd dient te worden is figuur nr. 1

- zoals voorgesteld door de aanvrager
- zoals voorgesteld door deze autoriteit omdat de aanvrager geen figuur heeft voorgesteld
- zoals geselecteerd door deze autoriteit omdat deze figuur de uitvinding beter karakteriseert

b.  geen enkele figuur dient samen met het uittreksel gepubliceerd te worden



**INTERNATIONAAL VERSLAG VAN  
NIEUWHEIDSONDERZOEK**

Internationaal octrooiaanvraag nr.  
PCT/EP2021/056265

**A. CLASSIFICATIE VAN HET ONDERWERP**

INV. C07C4/22 C07C15/46 C07C4/04 C07C15/06 C07C15/073  
C07C15/085 C07C15/44 C08J11/12 C10G9/00 C10G1/00

Volgens de Internationale Classificatie van octrooien (IPC) of zowel volgens de nationale classificatie als volgens de IPC.

**B. ONDERZOCHETE GEBIEDEN VAN DE TECHNIEK**

Onderzochte minimum documentatie (classificatie gevolgd door classificatiesymbolen)

C07C C08J C10G

Onderzochte andere documentatie dan de minimum documentatie, voor zover dergelijke documenten in de onderzochte gebieden zijn opgenomen

Tijdens de opzoeking geraadpleegde elektronische databases (naam van de database en, waar uitvoerbaar, gebruikte trefwoorden)

EPO-Internal, WPI Data

**C. RELEVANTE DOCUMENTEN**

Categorie *	Geciteerde documenten met, waar van toepassing, aanduiding van de relevante passages	Relevant voor conclusie nr.
X	JP 2003 267896 A (TOSHIBA PLANT KENSTSU CO LTD) 25 september 2003 (2003-09-25)	1-6,9-20
A	Geciteerd in de aanvraag Figuur 2; Voorbeeld 1,2 paragraaf 7, 9 paragraaf 46 paragraaf 34 - 36 -----	7,8

Verdere documenten worden vermeld in het vervolg van kader C.

Leden van dezelfde octroofamilie worden vermeld in bijlage

\* Speciale categorieën van geciteerde documenten

"A" niet tot de categorie X of Y behorende literatuur die de stand van de techniek beschrijft

"E" eerdere octrooiaanvraag of eerder octrooi, gepubliceerd op of na de internationale indieningsdatum

"L" om andere redenen vermelde literatuur

•O• niet-schriftelijke stand van de techniek

•P• tussen de voorrangsdatum en de indieningsdatum gepubliceerde literatuur

"T" na de indieningsdatum of de voorrangsdatum gepubliceerde literatuur die niet bezwarend is voor de octrooiaanvraag, maar die vermeld wordt ter verheldering van het principe dat ten grondslag ligt van de uitvinding

•X• de conclusie wordt als niet nieuw of niet inventief beschouwd t.o.v. deze publicatie

"Y" de conclusie wordt als niet inventief beschouwd ten opzichte van de combinatie van deze literatuur met andere geciteerde literatuur van dezelfde categorie, waarbij de combinatie voor de vakman voor de handliggend wordt geacht

"&" lid van dezelfde octroofamilie of overeenkomstige octrooipublicatie

Datum waarop het nieuwheidsonderzoek van het Internationale type werd voltooid

10 mei 2021

Verzenddatum van het verslag van nieuwheidsonderzoek van het Internationale type

19 mei 2021

Naam en adres van de ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevoegde functionaris

Kardinal, Siegmur

INTERNATIONAAL VERSLAG VAN  
NIEUWHEIDSONDERZOEK

Informatie over leden van dezelfde octroofamilie

Internationaal octrooiaanvraag nr.

PCT/EP2021/056265

Document zoals vermeld in het verslag van nieuwheidsonderzoek	Datum van publicatie	Leden van dezelfde octroofamilie	Datum van publicatie
JP2003267896 A	25-09-2003	JP 4161293 B2 JP 2003267896 A	08-10-2008 25-09-2003
-----			

TITEL: PROCESS FOR RECOVERING STYRENE MONOMER FROM A STYRENE-CONTAINING POLYMER

AANVRAGER : INDAVER

IPC CLASSIFICATIE: C07C4/22, C07C15/46, C07C4/04, C07C15/06, C07C15/073,  
C07C15/085, C07C15/44, C08J11/12, C10G9/00, C10G1/00, C10G1/10

ONDERZOEKER: Kardinal, Siegmars

GERAADPLEEGDE DATABASES : EPODOC, WPI

CLASSIFICATIESYMBOLLEN DIE DE OMVANG VAN HET ONDERZOEK DEFINIËREN:

IPC:

CPC: 1- C07C4/22, C07C15/46, 2- C07C4/04, C07C15/073, 3- C07C4/04, C07C15/06, 4-  
C07C4/04, C07C15/085, 5- C07C4/04, C07C15/44, C07C4/04, C07C4/22, C08J11/12,  
C08J2325/06, C10G9/00

FI/F-TERMS :

TREFWOORDEN OF ANDERE IN DE UITVINDING VOORKOMENDE ELEMENTEN:

Recovering styrene monomer from a plastic material which contains styrene-containing polymer (s) comprising cracking at a first temperature at which the plastic material is in a molten state, at a first gas pressure ( $\leq 1$  bara, e.g.  $\leq 0.06$  bara) in a first pyrolysis reactor to produce a first gaseous product phase which contains styrene monomer and styrene oligomers and the molten plastic material as a first liquid phase; removing the first gaseous product during the production thereof from the first pyrolysis reactor; and separating it into a first lighter fraction containing at least part of said styrene monomer and a first heavier fraction containing at least part of said styrene oligomers which is fed to a second pyrolysis reactor and cracked at a second temperature ( $\leq 650$  °C) and a gas pressure higher than the first gas pressure ( $\leq 1$  bara, e.g. 5 bara), to produce and remove a second gaseous product containing alpha-methyl-styrene, cumene, styrene monomer, ethyl-benzene and/or toluene

## PATENT COOPERATION TREATY

Van de  
INTERNATIONALE ONDERZOEKSAFDELING

Aan:   Zie formulier PCT/ISA/220	<h1 style="margin: 0;">PCT</h1> <p style="margin: 5px 0;"><b>SCHRIFTELIJKE OPINIE VAN DE INTERNATIONALE ONDERZOEKSAFDELING (PCT Regel 43bis.1)</b></p>	
Referentie aanvrager of vertegenwoordiger  Zie formulier PCT/ISA/220	Datum van verzending (dag/maand/jaar) zie formulier PCT/ISA/210 (tweede bladzijde)  <b>VOOR VERDERE ACTIE</b> zie paragraaf 2 hieronder	
Internationaal octrooiaanvraag no. PCT/EP2021/056265	Internationale indieningsdatum (dag/maand/jaar) 11.03.2021	Prioriteitsdatum (dag/maand/jaar) 13.03.2020
Internationale octrooi classificatie (IPC) of zowel nationale classificatie en IPC INV. C07C4i22 C07C15/46 C07C4/04 C07C15/06 C07C15/073 C07C15/085 C07C15/44 C08J11/12 C10G9/00 C10G1/00 C10G1/10		
Aanvrager INDAVER		

1. Deze opinie bevat aanwijzingen met betrekking tot de volgende punten:

- Kader nr. I Basis van de opinie
- Kader nr. II Prioriteit
- Kader nr. III Geen meningsvorming omtrent nieuwheid, inventiviteit en industriële toepasbaarheid
- Kader nr. IV Gebrek aan eenheid van uitvinding
- Kader nr. V Met redenen omklede verklaring onder artikel 43bis.1 (a)(i) met betrekking tot nieuwheid, inventiviteit en industriële toepasbaarheid; citaten en uitleg die een dergelijke verklaring ondersteunen
- Kader nr. VI Bepaalde geciteerde documenten
- Kader nr. VII Bepaalde gebreken in de Internationale aanvraag
- Kader nr. VIII Bepaalde opmerkingen met betrekking tot de Internationale aanvraag

2. **VERDERE ACTIE**

Indien een verzoek om een Internationaal Preliminair Onderzoek wordt gedaan, zal deze opinie doorgaans worden beschouwd als een schriftelijke opinie van de 'International Preliminary Examining Authority' ("IPEA"), behalve dat dit niet van toepassing is wanneer de aanvrager een andere autoriteit dan deze kiest om het IPEA te zijn en het gekozen IPEA het Internationale Bureau op grond van Regel 66.1 bis(b) ervan in kennis stelt dat de schriftelijke opinie van deze Internationale Onderzoeksafdeling niet zal worden overwogen.

Indien dit advies, zoals hierboven vermeld, wordt beschouwd als een schriftelijke opinie van het IPEA, wordt de aanvrager verzocht om een schriftelijk antwoord in te dienen bij het IPEA – indien van toepassing - met wijzigingen, vóór het verstrijken van 3 maanden vanaf de datum van verzending van formulier PCT/ISA/220 of vóór het verstrijken van 22 maanden vanaf de prioriteitsdatum, afhankelijk van welke datum later verstrijkt.

Voor meer opties, zie formulier PCT/ISA/220

Naam en adres van de ISA European Patent Office P.B. 5818 Patentlaan 2 NL-2280 HV Rijswijk Tel. +31 70 340 – 2040 Fax: +31 70 340 - 3016	Datum van voltooiing van deze opinie  Zie formulier PCT/ISA/210	Bevoegde functionaris  Kardinal, Siegmar  Telefoon nr. +31 70 340-0
---	---	---



## SCHRIFTELIJKE OPINIE VAN DE INTERNATIONALE ONDERZOEKSAFDELING

---

### Onderdeel I Basis van de opinie

---

1. Met betrekking tot de taal, deze opinie is opgesteld op basis van
2.
  - de internationale octrooiaanvraag in de taal waarin deze was ingediend.
  - een vertaling van de internationale octrooiaanvraag in , welke de taal is van een vertaling geleverd ten behoeve van het internationaal onderzoek (Regels 12.3(a) en 23.1 (b)).
2.  Deze opinie is opgesteld rekening houdend met de **rectificatie van een voor de hand liggende fout** in opdracht van of meegedeeld aan deze afdeling onder Regel 91 (Regel 43bis.1(a)).
3. Met betrekking tot **nucleotide en/of aminozuur sequenties** die, in voorkomend geval, genoemd worden in de internationale aanvraag, is deze opinie opgesteld op basis van een sequentie lijst die:
  - a.  deel uitmaakt van de internationale octrooiaanvraag zoals ingediend :
    - in de vorm van een Annex C/ST.25 tekst bestand.
    - op papier of in elektronische vorm.
  - b.  Aangeleverd werd samen met de internationale octrooiaanvraag onder PCT regel 13ter.1(a) met het oog op het internationale onderzoek enkel in de vorm van een Annex C/ST.25 tekst bestand.
  - c.  Later aangeleverd werd ten behoeve van het internationale onderzoek:
    - in de vorm van een Annex C/ST.25 tekst bestand (Regel 13ter.1(a)).
    - op papier of in elektronische vorm (Regel 13ter.1(b) en administratieve instructies, sectie 713).
4.  Bovendien, wanneer er meer dan één versie of kopie van een sequentielijst of van een of meerdere tabellen die er betrekking op hebben, werd ingediend, zijn de benodigde verklaringen ingediend, dat de informatie, die later of bij wijze van aanvullende kopieën werd geleverd naar gelang het geval, identiek is aan diegene die oorspronkelijk werd geleverd en niet verder gaat dan de openbaarmaking in de internationale aanvraag zoals oorspronkelijk ingediend.
5. Aanvullende opmerkingen :

**SCHRIFTELIJKE OPINIE VAN DE  
INTERNATIONALE ONDERZOEKSAFDELING**

**Onderdeel nr. V Gemotiveerde verklaring onder Regel 43bis.1(a)(i) ten aanzien van nieuwheid, inventiviteit en industriële toepasbaarheid; citaten en explicaties ter ondersteuning van deze verklaring**

**1. Verklaring**

Nieuwheid (N)	Ja: Conclusies	<u>1-20</u>
	Nee: Conclusies	
Inventiviteit (IS)	Ja: Conclusies	<u>7,8</u>
	Nee: Conclusies	<u>1-6, 9-20</u>
Industriële toepasbaarheid (IA)	Ja: Conclusies	<u>1-20</u>
	Nee: Conclusies	

**2. Citaten en uitleg:**

**Zie apart blad**

**Re Item V**

Er wordt verwezen naar het volgende document:

D1 JP 2003 267896 A (TOSHIBA PLANT KENSETSU CO LTD) 25 september 2003 (een machinevertaling D1T is bijgesloten)

**1** Nieuwheid (Artikel 33(2) PCT)

Noot: hierna aangehaalde paragrafen verwijzen naar de paragrafen van D1T.

D1 openbaart (cf. voorbeelden 1, 2 en figuur 2) een continue werkwijze voor het recupereren van ten minste styreenmonomeer uit een kunststofmateriaal dat ten minste één styreenhoudend polymeer bevat. De werkwijze van D1 omvat:

- het verwarmen van het kunststofmateriaal in een eerste pyrolysereactor **2** van een thermische-ontbindingsinrichting **1** tot een eerste temperatuur (500°C tot en met 700°C) waarop het kunststofmateriaal zich in gesmolten toestand bevindt.
- het kraken van het genoemde styreenhoudende polymeer op de genoemde eerste temperatuur, bij een eerste gasdruk (50 torr), in de genoemde eerste pyrolysereactor **2** om een eerste product te produceren dat styreenmonomeer en styreenoligomeren bevat en dat gasvormig is bij de genoemde eerste temperatuur en de genoemde eerste gasdruk, waarbij het genoemde eerste product een eerste gasfase vormt (gasfase in reactor **2**) in de eerste pyrolysereactor **2** en het gesmolten kunststofmateriaal dat daarin wordt gekraakt een eerste vloeibare fase vormt (vloeibare fase in reactor **2**).
- het verwijderen van het eerste product (gasvormig ontbindingsproduct dat vanuit uitlaat **5** in leiding **c** stroomt) tijdens de productie ervan uit de eerste pyrolysereactor **2**.
- het scheiden (kolommen **14**, **16**) van het eerste product dat wordt verwijderd uit de genoemde eerste pyrolysereactor **2** in een eerste lichtere fractie **22**, die ten minste een deel van het genoemde styreenmonomeer bevat, en in een eerste zwaardere fractie (**17**, **h**). Het is bekend (cf. [0007]) dat het thermisch ontbinden van een polystyreen styreendimeer en styreentrimeer oplevert als nevenproducten. Volgens [0009] wordt het ontbindingsproduct gescheiden in een licht product dat toluen omvat, het styreenmonomeer, en een zware olie. De zwaardere fractie (**17**, **h**) bevat dus het styreendimeer en -trimeer, d.w.z. ten minste een deel van de genoemde styreenoligomeren.
- het aanvoeren van de genoemde eerste zwaardere fractie (leidingen **h**, **k**) naar een tweede pyrolysereactor **2** van een tweede thermische-ontbindingsinrichting **30**

waarbij de genoemde styreenoligomeren worden gekraakt op een tweede temperatuur (700°C, cf. voorbeeld 2), bij een tweede gasdruk (normale druk) die hoger is dan de genoemde eerste gasdruk, om een tweede product te produceren. Het tweede product (gasvormig ontbindingsproduct dat wordt onttrokken via uitlaat 5) is gasvormig bij de genoemde tweede gasdruk en de genoemde tweede temperatuur. Het wordt verwijderd uit de tweede pyrolyse reactor 2 van een tweede thermische-ontbindingsinrichting 30 tijdens de productie ervan. D1 openbaart (cf. [0007]) dat het thermisch ontbinden van een polystyreen styreendimeer, een styreentrimeer, toluen, ethylbenzeen en (alfa)methylstyreen als nevenproduct oplevert, naast een styreenmonomeer. Die producten worden dus gevormd in de tweede thermische-ontbindingsinrichting 30.

Derhalve openbaart D1 een werkwijze waarbij

- de genoemde eerste gasdruk lager is dan 1,0 bara (50 torr) en
- de genoemde tweede gasdruk hoger is dan 1,0 bara (“normale druk” wordt geacht iets hoger te zijn dan 1 bara).

Het onderscheidende kenmerk van de onderhavige conclusie 1 is bijgevolg dat “de genoemde tweede temperatuur lager is dan 650°C”. Een temperatuur van 700°C wordt geopenbaard in voorbeeld 2 van D1.

De materie van onafhankelijke conclusie 1 en afhankelijke conclusies 2 tot en met 20 is daarom nieuw.

## 2 Inventiviteit (Artikel 33(3) PCT)

### 2.1 Document D1 vertegenwoordigt de dichtstbijzijnde stand van de techniek en het startpunt van de probleem-oplossing-benadering.

Het enige onderscheidende kenmerk van de werkwijze van de onderhavige conclusie 1 ten opzichte van de bekende werkwijze uit D1 is een lagere temperatuur in de tweede pyrolysestap (lager dan 650°C vs. 700°C, zie hoger).

Een technisch effect van dit ene onderscheidende kenmerk wordt niet aangetoond. De onderhavige aanvraag bevat voorbeelden met de bedoeling aan te tonen dat de combinatie van een lagere temperatuur en een verhoogde druk in de tweede pyrolysestap het mogelijk maakt om de totale hoeveelheid vluchtige stoffen te verhogen. Er zijn echter geen gegevens om een technisch effect van het ene onderscheidende kenmerk (een iets lagere temperatuur) te staven. Derhalve kan er geen technisch effect in aanmerking worden genomen bij het formuleren van het objectieve technische probleem. Het objectieve technische probleem is het verschaffen van een alternatieve werkwijze voor het recupereren van ten minste styreenmonomeer uit een kunststofmateriaal.



D1 toont reeds aan (cf. [0046]) dat er een voordeel verbonden is aan het installeren van een tweede pyrolyse reactor 2, in de zin dat de omstandigheden voor thermische ontbinding van een polystyreen en de omstandigheden voor thermische ontbinding van een zware olie onafhankelijk kunnen worden ingesteld. Zo doen bijvoorbeeld de manieren waarop een polystyreen thermisch wordt ontbonden in een toestand met verlaagde druk de productieverhouding van een nevenproduct afnemen. Maar aangezien thermische ontbinding door normale druk de verblijftijd van thermische ontbinding kan verlengen, is het op deze manier gemakkelijk om een zware olie volledig te ontbinden. Bijgevolg toont D1 een voordeel aan van het gebruik van geoptimaliseerde omstandigheden in de eerste en tweede pyrolyse reactor, waaronder een hogere druk in de tweede pyrolyse reactor. De vakman zou die omstandigheden routinematig optimaliseren om alternatieve werkwijzen te verschaffen. Daartoe behoort het verlagen van de temperatuur in de tweede pyrolyse stap van 700°C tot minder dan 650°C. De vakman zou routinematig werken binnen het temperatuurbereik dat in D1 wordt gesuggereerd voor de eerste pyrolyse stap, d.w.z. 500°C tot en met 700°C (cf. [0034]), en zonder inventieve bijdrage tot de materie van de onderhavige conclusie 1 komen. Om louter een alternatieve werkwijze te verschaffen is geen specifieke aanleiding nodig, de verwachting van succes mag als vanzelfsprekend worden beschouwd.

- 2.2 De situatie lijkt anders te zijn voor een werkwijze volgens de onderhavige conclusie 7 of de onderhavige conclusie 8.

Conclusie 7 vereist dat “de genoemde tweede gasdruk hoger is dan 4 bara”. Die waarde is beduidend hoger dan de normale druk die wordt gebruikt in D1. Het lijkt aannemelijk dat een effect zoals aangetoond in de onderhavige voorbeelden (verhoogde totale hoeveelheid vluchtige stoffen) tot stand kan worden gebracht.

Evenzo vereist conclusie 8 dat de genoemde tweede gasdruk hoger is dan of gelijk is aan een minimale gasdruk  $P_{\min}$ , die wordt berekend als functie van de tweede temperatuur (de kromme is afgebeeld in figuur 2 van de onderhavige aanvraag). Daarbij wordt opgemerkt dat de tweede gasdruk altijd hoger dient te zijn dan 1 bara, ook voor de lagere temperaturen in de tweede reactor, in het bijzonder voor de temperaturen lager dan ongeveer 422°C, aangezien, volgens de vergelijking van conclusie 8, die temperatuur overeenkomt met een druk van 1,0 bara (zie pagina 19 van de onderhavige aanvraag). D1 maakt geen melding of suggestie van een dergelijke temperatuurafhankelijke minimale druk in de tweede pyrolyse stap, en opnieuw lijkt op aannemelijke wijze een technisch effect te worden aangetoond.

Bijgevolg blijkt dat een combinatie van de onderhavige conclusies 1 en 7, of, bij wijze van

alternatief, een combinatie van de onderhavige conclusies 1 en 8 niet gekend is in de beschikbare stand van de techniek, en evenmin daardoor voor de hand liggend wordt gemaakt. Merk op dat deze suggestie enkel bedoeld is om de aanvrager bij te staan bij zijn beslissing over hoe verder te gaan. Het sluit geenszins uit dat alternatieve oplossingen in overweging worden genomen die door de aanvrager worden ingediend. De verantwoordelijkheid voor het bepalen van de tekst van de aanvraag, en in het bijzonder voor het bepalen van de materie waarvoor bescherming wordt aangevraagd, blijft bij de aanvrager.

- 2.3 De andere afhankelijke conclusies lijken kenmerken te bevatten die reeds gekend zijn in de stand van de techniek, of daardoor voor de hand liggend worden gemaakt. Betreffende conclusies 2-3 openbaart D1 dat het tweede product uit de tweede pyrolyse reactor **2** wordt verwijderd via uitlaat **5**, via leiding **l**, en wordt ingevoerd in leiding **c**. Het tweede product wordt dus samen met het eerste product gescheiden in een tweede lichtere fractie (component met laag kookpunt **e**, die ten minste toluene omvat) en in ten minste één tweede zwaardere fractie **f**, die styreenoligomeren bevat. Die oligomeren worden uiteindelijk gerecirculeerd naar de tweede pyrolyse reactor **2**. Die configuratie wordt geacht onder de open formulering van de onderhavige conclusies te vallen. De installatie van een derde pyrolyse reactor volgens conclusie 13 wordt niet als inventief beschouwd. De vakman zou het als een routinehandeling beschouwen om de eerste pyrolyse reactor **2** van D1 te vervangen door twee in serie verbonden reactoren, en zou de omstandigheden en handelingen toepassen die reeds geopenbaard zijn in D1. Om louter een alternatieve werkwijze te verschaffen is geen specifieke motivatie nodig, en de vakman zou verwachten dat het technische probleem wordt opgelost. Hetzelfde geldt voor de uitvoeringsvormen van conclusie 14 tot 20.

Bijgevolg lijken afhankelijke conclusies 2 tot 6 en 9 tot 20 geen bijkomende kenmerken te bevatten die, in combinatie met de kenmerken van een conclusie waarnaar ze verwijzen, voldoen aan de vereisten van de PCT betreffende inventiviteit.