



(74) 代理人: 青 木 篤, 外 (AOKI, Atsushi et al.);
〒1058423 東京都港区虎ノ門三丁目5
番1号 虎ノ門37森ビル青和特許
法律事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保
護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ,
BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,
CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,
HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, KE, KG, KH,
KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY,
MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ,
NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT,
QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保
護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS,
MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM,
ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ,
TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ,
DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT,
LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS,
SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM,
GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告(条約第21条(3))

taining gas supply port (43) to a treatment solution (52) inside of the treatment tank (31); a step in which, by raising the ozone-containing gas (53) while lowering the superabsorbent polymers and pulp fibers in the treatment tank (31), the ozone-containing gas (53) is brought into contact with the superabsorbent polymers and the pulp fibers, and pulp fibers for cellulose nanofiberization are formed from the pulp fibers; and a step for discharging the treatment solution (52) from a treatment solution discharge port (33), wherein the pulp fibers for cellulose nanofiberization have a lignin content of less than or equal to 0.1 mass%.

(57) 要約: 本開示は、リグニン含有率が低く且つその分布が小さく、セルロースナノファイバー化性に優れるセルロースナノファイバー化用パルプ繊維が製造可能である、使用済の衛生用品のパルプ繊維から、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維を製造する方法を提供することを目的とする。本開示の製造法は、以下の通りである。使用済の衛生用品由来の高吸収性ポリマー及びパルプ繊維を含む混合液(51)を、混合液供給口(32)から処理槽(31)に供給するステップ、オゾン含有ガス(53)を、オゾン含有ガス供給口(43)から処理槽(31)内の処理液(52)に供給するステップ、処理槽(31)内で、高吸収性ポリマー及びパルプ繊維を下降させながら、オゾン含有ガス(53)を上昇させることにより、オゾン含有ガス(53)を、高吸収性ポリマー及びパルプ繊維と接触させ、パルプ繊維からセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を形成するステップ、処理液(52)を、処理液排出口(33)から排出するステップを含み、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、0.1質量%以下のリグニン含有率を有することを特徴とする方法。

明 細 書

発明の名称：

セルロースナノファイバー化用パルプ繊維を製造する方法、及びセルロースナノファイバー化用パルプ繊維

技術分野

[0001] 本開示は、使用済の衛生用品のパルプ繊維からセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を製造する方法、並びにパルプ繊維及び高吸収性ポリマーを含む使用済の衛生用品由来のセルロースナノファイバー化用パルプ繊維に関する。

背景技術

[0002] 使用済の使い捨ておむつ等の衛生用品をリサイクルするための技術が検討されている。

例えば、特許文献 1 には、主に衛生用品として再利用可能なりサイクルパルプを製造する方法が開示されている。具体的には、特許文献 1 には、パルプ繊維及び高吸収性ポリマーを含む使用済の衛生用品からパルプ繊維を回収し、衛生用品として再利用可能なりサイクルパルプを製造する方法であって、該方法が、使用済の衛生用品を、多価金属イオンを含む水溶液又は pH が 2.5 以下の酸性水溶液中で、使用済の衛生用品に物理的な力を作用させることによって、使用済み衛生物品をパルプ繊維とその他の素材に分解する工程、分解工程において生成したパルプ繊維とその他の素材の混合物からパルプ繊維を分離する工程、及び分離されたパルプ繊維を pH が 2.5 以下のオゾン含有水溶液で処理する工程を含むことを特徴とする方法が記載されている。

[0003] 特許文献 1 において、パルプ繊維をオゾン含有水溶液で処理する理由は、分離されたパルプ繊維には少なからず高吸収性ポリマーが残存しており、当該高吸収性ポリマーを酸化分解し、可溶化させることにより、パルプ繊維から除去するためである。特許文献 1 では、パルプ繊維をオゾン含有水溶液で

処理する方法として、処理槽にオゾン含有水溶液を入れ、そのオゾン含有水溶液の中に分離されたパルプ繊維を入れる方法が開示されている。上記方法では、処理の際、オゾン含有水溶液を適度に攪拌して水流を作り出すことが好ましく、容器に入れた水溶液の中にオゾンガスを吹き込み、オゾンガスの泡の上昇によって、オゾン含有水溶液中に水流を発生させてもよい。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2016-881号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 特許文献1では、「リサイクルパルプ繊維」を『セルロースナノファイバー化用パルプ繊維』として再利用するために好ましい製造方法については記載されていない。

[0006] 使用済の衛生用品においては、パルプ繊維及び高吸収性ポリマーを含む吸収体等において、(i)高吸収性ポリマーが体液等の液体を吸収するにつれて肥大化し、パルプ繊維を巻き込む、(ii)肥大化した高吸収性ポリマー同士が、パルプ繊維を巻き込みつつゲルブロッキングを生じさせる等により、複数の高吸収性ポリマーと、複数のパルプ繊維とが、連結構造体を形成する場合が多い。

[0007] そのような場合に、特許文献1に記載の方法では、連結構造体を構成する高吸収性ポリマー等を溶解可能な状態に分解することができるものの、連結構造体を構成するパルプ繊維をセルロースナノファイバーとして再利用するためには必ずしも好適とはいえないことが分かった。

従って、本開示は、リグニン含有率が低くかつその分布が狭く、セルロースナノファイバー化性に優れるセルロースナノファイバー化用パルプ繊維が製造可能である、使用済の衛生用品のパルプ繊維からセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を製造する方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0008] 本開示者らは、使用済の衛生用品のパルプ繊維から、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維を製造する方法であって、次の各ステップ、混合液供給口と、上記混合液供給口よりも下方に配置された処理液排出口及びオゾン含有ガス供給口とを備える処理槽を準備する、準備ステップ、使用済の衛生用品由来の高吸収性ポリマー及びパルプ繊維と、水とを含む混合液を、上記混合液供給口から上記処理槽に供給する、混合液供給ステップ、オゾン含有ガスを、上記オゾン含有ガス供給口から上記処理槽内の処理液に供給する、オゾン含有ガス供給ステップ、上記処理槽内で、上記高吸収性ポリマー及びパルプ繊維を下降させながら、上記オゾン含有ガスを上昇させることにより、上記オゾン含有ガスを、上記高吸収性ポリマー及びパルプ繊維と接触させ、上記高吸収性ポリマーの少なくとも一部を上記処理液に溶解させるとともに、上記パルプ繊維からセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を形成する、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維形成ステップ、上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維を含む上記処理液を、上記処理液排出口から排出する、処理液排出ステップを含み、上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、0.1質量%以下のリグニン含有率を有することを特徴とする方法を見出した。

発明の効果

[0009] 本開示の使用済の衛生用品のパルプ繊維からセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を製造する方法は、リグニン含有率が低く且つその分布が狭く、セルロースナノファイバー化性に優れるセルロースナノファイバー化用パルプ繊維が製造可能である。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]本開示の方法に係る実施の形態を示すフローチャートである。

[図2]図1のオゾン処理工程の装置の構成例を示す概略図である。

[図3]図1のオゾン処理工程の装置の他の構成例を示す概略図である。

[図4]図1のオゾン処理工程の装置のさらに他の構成例を示す概略図である。

発明を実施するための形態

[0011] 本開示は、具体的には以下の態様に関する。

[態様 1]

使用済の衛生用品のパルプ繊維からセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を製造する方法であって、次の各ステップ、

混合液供給口と、上記混合液供給口よりも下方に配置された処理液排出口及びオゾン含有ガス供給口とを備える処理槽を準備する、準備ステップ、

使用済の衛生用品由来の高吸収性ポリマー及びパルプ繊維と、水とを含む混合液を、上記混合液供給口から上記処理槽に供給する、混合液供給ステップ、

オゾン含有ガスを、上記オゾン含有ガス供給口から上記処理槽内の処理液に供給する、オゾン含有ガス供給ステップ、

上記処理槽内で、上記高吸収性ポリマー及びパルプ繊維を下降させながら、上記オゾン含有ガスを上昇させることにより、上記オゾン含有ガスを、上記高吸収性ポリマー及びパルプ繊維と接触させ、上記高吸収性ポリマーの少なくとも一部を上記処理液に溶解させるとともに、上記パルプ繊維からセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を形成する、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維形成ステップ、

上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維を含む上記処理液を、上記処理液排出口から排出する、処理液排出ステップ、

を含み、

上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、0.1質量%以下のリグニン含有率を有する、

ことを特徴とする、上記方法。

[0012] 使用済の衛生用品においては、パルプ繊維及び高吸収性ポリマーを含む吸収体等において、(i) 高吸収性ポリマーが体液等の液体を吸収するにつれて肥大化し、パルプ繊維を巻き込む、(ii) 肥大化した高吸収性ポリマー同士が、パルプ繊維を巻き込みつつゲルブロッキングを生じさせる等により

、複数の高吸収性ポリマーと、複数のパルプ繊維とが、連結構造体を形成する場合が多い。

[0013] 特許文献 1 に記載の方法では、オゾン含有ガスが、連結構造体を形成していない遊離のパルプ繊維を処理し、当該パルプ繊維に含まれるリグニンを分解することができるものの、連結構造体中を構成しているパルプ繊維、すなわち、高吸収性ポリマーに囲まれたパルプ繊維に接触しにくいいため、当該連結構造体を構成しているパルプ繊維を十分に処理できない、すなわち、当該高吸収性ポリマーに囲まれたパルプ繊維に含まれるリグニンを分解しにくい場合があった。従って、特許文献 1 に記載の方法により製造されるリサイクルパルプ繊維は、リグニン含有率の分布が狭く、リグニン含有率が高いものを含んでいた。また、上記リグニン含有率の分布は、原料となる使用済の衛生用品が、複数種、例えば、異なる会社より販売されている同一種の製品（大人用使い捨ておむつ）、同一の会社より販売されている異なる種類の商品（例えば、大人用使い捨ておむつ及び子供用使い捨ておむつ）を含む場合に、より広くなる傾向があった。なお、リグニン含有率が高いリサイクルパルプ繊維は、セルロースナノファイバー化しにくい傾向がある。

[0014] 上記製造方法は、所定のセルロースナノファイバー化用パルプ繊維形成ステップを含み、上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維形成ステップでは、高吸収性ポリマー及びパルプ繊維を下降させながら、オゾン含有ガスを上昇させ、高吸収性ポリマー及びパルプ繊維と、オゾン含有ガスとを接触させる。遊離の高吸収性ポリマー及び遊離のパルプ繊維、並びに連結構造体では、相対的に比重の高い遊離の高吸収性ポリマー及び連結構造体が、相対的に比重の低い遊離のパルプ繊維よりも沈降性が高い傾向にある。一方、オゾン含有ガスは、オゾンを消費して、高吸収性ポリマー及びパルプ繊維を処理しながら上昇するため、下方の位置に存在するオゾン含有ガスは、上方の位置に存在するオゾン含有ガスよりも、オゾンの含有率が高い（すなわち、フレッシュである）傾向にある。

[0015] なお、本明細書において、下降速度は、処理槽 31 内の処理液 52 の、下

方への移動速度に関するものであり、一般的に、第1の流速と、第2の流速、処理槽の大きさ等によって一義的に決まる。一方、本明細書において、沈降性は、処理槽31内の処理液52に含まれる、パルプ繊維、高吸収性ポリマー及び連結構造体の、重力による鉛直方向への落下しやすさを表す性質を意味し、比重等に応じて、パルプ繊維、高吸収性ポリマー及び連結構造体のそれぞれが異なる沈降性を有する。

[0016] 従って、上記製造方法では、沈降性が相対的に高い、遊離の高吸収性ポリマー及び連結構造体中の高吸収性ポリマーを、よりフレッシュなオゾン含有ガスで的確に酸化分解し、連結構造体を構成していたパルプ繊維を遊離させることができるとともに、沈降性が相対的に低く、処理液排出口に到達するまでに相対的に時間のかかる遊離のパルプ繊維を、オゾン含有ガスが時間をかけて処理し、遊離のパルプ繊維に含まれるリグニンを分解することができる。

[0017] また、一般的に、パルプ繊維は、リグニン含有率が高いほど、比重が高い傾向があることから、上記製造方法では、リグニン含有率が相対的に高いパルプ繊維が、リグニン含有率が相対的に低いパルプ繊維よりも相対的に沈降性が低いため、よりフレッシュなオゾン含有ガスが、リグニン含有率が相対的に高いパルプ繊維と接触し、そこに含まれるリグニンを分解することができる。

[0018] 上記製造方法では、上記製造方法により製造されるセルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、リグニン含有率の分布を拡げにくいところ、上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、所定の低濃度のリグニン含有率をさらに有する。従って、上記製造方法では、リグニン含有率の分布が狭く、セルロースナノファイバー化性に優れるセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を製造することができる。

[0019] [態様2]

上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、300 mL/h以上の叩解度低下速度を有する、態様1に記載の方法。

[0020] 上記製造方法では、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、所定の叩解度低下速度を有するので、続くセルロースナノファイバー形成ステップにおいて、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が毛羽立ちやすく、セルロースナノファイバー化されやすくなる。従って、上記製造方法は、セルロースナノファイバー化性に優れるセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を製造することができる。

[0021] [態様 3]

上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維形成ステップにおいて、上記オゾン含有ガスを、マイクロバブル又はナノバブルとして、上記オゾン含有ガス供給口から供給する、態様 1 又は 2 に記載の方法。

[0022] 上記製造方法では、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維形成ステップにおいて、オゾン含有ガスを、マイクロバブル又はナノバブルとしてオゾン含有ガス供給口から供給するので、高吸収性ポリマーと、パルプ繊維とが連結構造体を形成している場合であっても、マイクロバブル又はナノバブルが、高吸収性ポリマー、連結構造体及びパルプ繊維に浮力を与えるため、それらの沈降性が低下する。従って、高吸収性ポリマー、連結構造体及びパルプ繊維が、処理液排出口に到達するまでの時間が長くなり、オゾンが、遊離の高吸収性ポリマーと、連結構造体を構成する高吸収性ポリマーとを分解し、そして遊離のパルプ繊維と、連結構造体を構成するパルプ繊維とを十分に処理することができる。従って、上記製造方法は、セルロースナノファイバー化性に優れるセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を製造することができる。

[0023] [態様 4]

上記処理液が酸性である、態様 1 ～ 3 のいずれか一項に記載の方法。

[0024] 上記製造方法では、処理液が酸性（例えば、pH 2.5 以下）である。従って、処理すべき高吸収性ポリマーを酸により不活化することができるか、又は処理すべき高吸収性ポリマーが既に不活化されている場合には、引き続き、高吸収性ポリマーが不活化された状態を保持することができる。それに

より、高吸収性ポリマーと、パルプ繊維とが連結構造体を形成している場合であっても、オゾン含有ガス中のオゾンが、連結構造体を構成する高吸収性ポリマーを除去することができるとともに、オゾン含有ガス中のオゾンが、連結構造体を構成するパルプ繊維に作用し、パルプ繊維のリグニン含有率を下げる可以降低（リグニン含有率の低いセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を形成することができる）。

[0025] [態様 5]

上記混合液供給ステップの前に、上記高吸収性ポリマーを酸で不活化する不活化ステップをさらに含む、態様 1～4 のいずれか一項に記載の方法。

[0026] 上記製造方法は、所定の不活化ステップをさらに含むため、高吸収性ポリマーと、パルプ繊維とが連結構造体を形成している場合であっても、オゾン含有ガス中のオゾンが、使用済の衛生用品由来の高吸収性ポリマー、パルプ繊維及び水を含む混合液が処理槽に供給されてすぐに、連結構造体を構成する高吸収性ポリマーを除去することができるとともに、オゾン含有ガス中のオゾンが、連結構造体を構成するパルプ繊維に作用し、パルプ繊維のリグニン含有率を下げる可以降低（リグニン含有率の低いセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を形成することができる）。

[0027] [態様 6]

上記酸が、排泄物に含まれる金属イオンと錯体を形成可能な酸である、態様 5 に記載の方法。

[0028] 上記製造方法では、上記酸が、排泄物に含まれる金属イオンと錯体を形成可能な酸であるため、製造されるセルロースナノファイバー化用パルプ繊維に、金属イオンが含まれにくい。従って、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維から、セルロースナノファイバーを製造する際に、金属イオン及びその析出物が、セルロースナノファイバー形成工程に用いられる設備を痛めにくく、そしてセルロースナノファイバー化用パルプ繊維の微細化を阻害しにくい。

[0029] [態様 7]

上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、0.65質量%以下の灰分率を有する、態様1～6のいずれか一項に記載の方法。

[0030] 上記製造方法では、上記製造方法により製造されるセルロースナノファイバー化用パルプ繊維が所定の灰分率を有する。従って、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維から、セルロースナノファイバーを製造する際に、金属イオン及びその析出物が、セルロースナノファイバー形成工程に用いられる設備を痛めにくく、そしてセルロースナノファイバー化用パルプ繊維の微細化を阻害しにくい。

[0031] [態様8]

上記混合液供給ステップにおいて、上記混合液を、上記混合液供給口から上記処理槽に第1の流量で連続的に供給し、上記処理液排出ステップにおいて、上記処理液を、上記処理液排出口から第2の流量で連続的に排出する、態様1～7のいずれか一項に記載の方法。

[0032] 上記製造方法では、混合液供給ステップにおいて、混合液を、混合液供給口から処理槽に第1の流量で連続的に供給し、処理液排出ステップにおいて、処理液を、処理液排出口から第2の流量で連続的に排出するため、処理すべき高吸収性ポリマー及びパルプ繊維の処理時間が均一化され、処理液に含まれるセルロースナノファイバー化用パルプ繊維のリグニン含有率の分布が狭くなる（ばらつきが少なくなる）。従って、上記製造方法は、セルロースナノファイバー化性に優れるセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を製造することができる。

[0033] [態様9]

上記処理液排出ステップの後に、上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維からセルロースナノファイバーを形成する、セルロースナノファイバー形成ステップをさらに含む、態様1～8のいずれか一項に記載の方法。

[0034] 上記製造方法は、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維からセルロースナノファイバーを効率よく製造することができる。

[0035] [態様10]

パルプ繊維及び高吸収性ポリマーを含む使用済の衛生用品由来のセルロースナノファイバー化用パルプ繊維であって、

上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、0.1質量%以下のリグニン含有率を有する、

ことを特徴とする、上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維。

[0036] 上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維は、所定のリグニン含有率を有するので、セルロースナノファイバー化性に優れる。

[0037] [態様11]

上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、300mL/h以上の叩解度低下速度を有する、態様10に記載のセルロースナノファイバー化用パルプ繊維。

[0038] 上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維は、所定の叩解度低下速度を有するので、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、続くセルロースナノファイバー形成ステップにおいて、毛羽立ちやすく、セルロースナノファイバー化されやすい。

[0039] [態様12]

上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、0.65質量%以下の灰分率を有する、態様10又は11のいずれかに記載のセルロースナノファイバー化用パルプ繊維。

[0040] 上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維は、所定の灰分率を有するため、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維から、セルロースナノファイバーを製造する際に、金属イオン及びその析出物が、セルロースナノファイバー形成工程に用いられる設備を痛めにくく、そしてセルロースナノファイバー化用パルプ繊維の微細化を阻害しにくい。

[0041] 以下、使用済の衛生用品のパルプ繊維から、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維を製造する方法（以下、単に「セルロースナノファイバー化用パルプ繊維の製造方法」と称する場合がある）について説明する。

なお、使用済の衛生用品とは、使用者によって使用された衛生用品であっ

て、使用者の液体の排泄物を吸収した状態の衛生用品を含み、使用されたが排泄物を吸収していないもの、未使用のもの等を含む。

[0042] まず、衛生用品の構成例について説明する。衛生用品は、表面シートと、裏面シートと、表面シートと裏面シートとの間に配置された吸収体とを備える。衛生用品としては、例えば、紙おむつ、尿取りパッド、生理用ナプキン、ベッドシート、ペットシートが挙げられる。

[0043] 表面シートの構成部材としては、例えば、不織布又はフィルムが挙げられ、具体的には液透過性の不織布、液透過孔を有する合成樹脂フィルム、これらの複合シート等が挙げられる。裏面シートの構成部材としては、例えば、不織布又はフィルムが挙げられ、具体的には液不透過性の不織布、液不透過性の合成樹脂フィルム、これら不織布と合成樹脂フィルムとの複合シートが挙げられる。

[0044] 吸収体の構成部材としては、吸収コア（例えば、パルプ繊維及び高吸収性ポリマー）と、コアラップとが挙げられる。パルプ繊維としては、衛生用品として使用可能であれば特に制限はないが、例えば、セルロース系繊維が挙げられる。セルロース系繊維としては、例えば、木材パルプ、架橋パルプ、非木材パルプ、再生セルロース、半合成セルロース等が挙げられる。高吸収性ポリマー（Super Absorbent Polymer：SAP）としては、衛生用品として使用可能であれば特に制限はないが、例えば、ポリアクリル酸塩系、ポリスルホン酸塩系、無水マレイン酸塩系のものが挙げられる。

[0045] 吸収体の一方の面及び他方の面は、それぞれ表面シート及び裏面シートに接着剤を介して接合されている。平面視で、表面シートのうちの、吸収体を囲むように、吸収体の外側に延出した部分（周縁部分）は、裏面シートのうちの、吸収体を囲むように、吸収体の外側に延出した部分（周縁部分）と接着剤を介して接合されている。従って、吸収体は表面シートと裏面シートとの接合体の内部に包み込まれている。接着剤としては、衛生用品として使用可能であり、後述の温水により軟化等して接合力が低下するものであれば特

に制限はないが、例えば、ホットメルト型接着剤が挙げられる。ホットメルト型接着剤としては、例えば、スチレンーエチレンーブタジエンスチレン、スチレンーブタジエンスチレン、スチレンーイソプレネースチレン等のゴム系主体、又はポリエチレン等のオレフィン系主体の感圧型接着剤又は感熱型接着剤が挙げられる。

[0046] 図1は、使用済の衛生用品を構成材料に分離する材料分離方法を示すフローチャートである。この材料分離方法は、使用済の衛生用品を、フィルムと、不織布と、パルプ繊維と、高吸収性ポリマーとに分離する方法である。この材料分離方法は、前処理工程S11と、分解工程S12と、分離工程S13とを備える。

前処理工程S11は、使用済の衛生用品を水で膨潤させる。分解工程S12は、膨潤した使用済の衛生用品に物理的な衝撃を与えて、使用済の衛生用品を、フィルム、不織布、コアラップ等と、吸収コア（例えば、パルプ繊維及び高吸収性ポリマー）とに分解する。分離工程S13は、フィルムと、不織布と、パルプ繊維と、高吸収性ポリマーとを分離する。

[0047] 本開示のセルロースナノファイバー化用パルプ繊維の製造方法は、この材料分離方法のうちの分離工程S13に含まれる。なお、パルプ繊維及び高吸収性ポリマーの混合物を、何らかの方法で予め取得している場合には、前処理工程S11、分解工程S12及び分離工程S13におけるセルロースナノファイバー化用パルプ繊維の製造方法より前の工程は実施不要である。以下、各工程について説明する。

[0048] 前処理工程S11は、複数の使用済の衛生用品を、外部から回収等したときの状態のまま、すなわち、破壊、切断等を行わず、丸められた状態又は折り畳まれた状態であればその状態のまま、かつ吸収体の高吸収性ポリマーの不活化もせず、水を吸収させて膨潤させる。本実施の形態では、使用済の衛生用品に温水を吸収させて膨潤させるか、又は、水を吸収させ膨張させた後に吸収された水を加熱して温水にする。温水とは、常温（ $20^{\circ}\text{C} \pm 15^{\circ}\text{C}$ （ $5 \sim 35^{\circ}\text{C}$ ）：JIS Z 8703）よりも高い温度の水をいう。

[0049] 通常、使用済の衛生用品に実際に吸収されている液状の排泄物の量は、衛生用品が吸収可能な最大吸収量と比べて非常に小さい（例えば、最大吸収量の約10～20質量%）。本実施の形態では、前処理工程S11において、使用済の衛生用品を温水に浸すことで、使用済の衛生用品の最大吸収量に近い量（例えば、最大吸収量の80質量%以上）まで水を吸収させる。又は、使用済の衛生用品を常温の水に浸し、使用済の衛生用品の最大吸収量に近い量まで水を吸収させた後、温水の温度まで使用済の衛生用品全体を加熱する。それにより、使用済の衛生用品を、温水又は常温の水（以下、単に「温水」ともいう。）で非常に膨張した状態にできる。その結果、使用済の衛生用品には非常に高い内圧が生じることになる。なお、水を温水にする目的は、主に、後述されるように接着剤の接着力を弱めるためである。

[0050] ここで、使用済の衛生用品は、当初裏面シートを外側にして（表面シートを内側に隠して）丸められた状態又は折り畳まれた状態にある場合、温水に浸されることで、使用済の衛生用品の吸収体が温水中で温水を吸収して膨張する。その結果、使用済の衛生用品の内圧が高まり、使用済の衛生用品に外側へ向かって開こうとする力が働いて、丸められた状態又は折り畳まれた状態の使用済の衛生用品が外側へ向かって開いて、概ね平らな状態になる。すなわち、使用済の衛生用品を温水中において平坦に展開された状態にできる。このとき、使用済の衛生用品は、吸収体が多量の温水を吸収して非常に膨張しているので、その表面、すなわち、吸収体を包み込んでいる表面シート及び裏面シートのいずれかの箇所が容易にはち切れそうな状態になっている。すなわち、前処理工程S11により、使用済の衛生用品を、いずれかの表面が裂けて切れそうな状態にできる。なお使用済の衛生用品が、当初から平坦に展開された状態の場合、その状態のまま表面のいずれかの箇所が容易にはち切れそうな状態になる。この状態は、使用済の衛生用品が破断等されている場合には生じ得ない。

[0051] さらに、使用済の衛生用品が温水に浸され、及び／又は温水を吸収することで、各構成部材間の接合に使用されている接着剤（例えば、ホットメルト

接着剤)を温水の熱により軟化させ、接着剤の接合力を低下できる。例えば、表面シートの周縁部分と裏面シートの周縁部分とを接合する接着剤を、温水の熱で軟化させ、その接着剤の接合力を低下できる。さらに、表面シートと吸収体とを接合する接着剤及び裏面シートと吸収体とを接合する接着剤を、温水の熱で軟化させ、それらの接着剤の接合力を低下できる。

[0052] このように前処理工程 S 1 1 では、使用済の衛生用品の吸収体の膨張により、使用済の衛生用品の表面のいずれかの箇所がはち切れそうな状態、かつ、接着剤の接合力が低下された状態、を生じさせることができる。使用済の衛生用品がこのような状態になることで、後述の分解工程において、使用済の衛生用品を確実に分解することができる。

[0053] 前処理工程 S 1 1 における温水の温度は、使用済の衛生用品の接着剤が軟化できる限り特に限定されないが、例えば、60℃以上が挙げられ、好ましくは70℃以上且つ98℃以下である。温水の温度を70℃以上とすることで、構成部材間を接合する接着剤を温水の熱でより軟化でき、接着剤の接合力をより低下できる。温水の温度を98℃以下とすることで、温水が確実に液体として存在するので、使用済の衛生用品に温水をより確実に吸収させることができる。吸収体の膨張及び温水の熱により、使用済の衛生用品の表面がはち切れそうな状態かつ接着剤の接合力が低下された状態をより確実に発生させることができる。温度の測定については、使用済の衛生用品を浸した状態の温水の温度を測定するか、又は、最大吸収量に近い量まで水を吸収した使用済の衛生用品の表面から5mm内側の温度（温度センサの先端を挿入）を測定する。

[0054] また、使用済の衛生用品の再利用においては、構成材料の殺菌は極めて重要である。温水の温度を70℃以上とすることで、使用済の衛生用品を殺菌（消毒）する効果を奏することも可能となるので好ましい。

[0055] 前処理工程 S 1 1 における処理時間、すなわち、使用済の衛生用品を温水に浸している時間は、使用済の衛生用品の吸収体が膨張できる限り特に限定されないが、例えば、2～60分であり、好ましくは4～30分である。時

間が短すぎると吸収体が十分に膨張できず、長すぎると時間が無駄になり処理コストが不必要に増加する。

[0056] また、前処理工程 S 1 1 における吸収体の温水の吸収量は、後述の分解工程にて使用済の衛生用品を分解できる程度に吸収体が膨張できれば特に制限はないが、例えば、使用済の衛生用品の最大吸収量の 80 質量%以上が挙げられ、好ましくは 90 質量%以上である。それにより、使用済の衛生用品を、水で目一杯に膨張した状態にすることができる。その結果、使用済の衛生用品の吸収体に極めて高い内圧を生じさせることができる。

[0057] ただし、最大吸収量は、以下の手順で測定する。

(1) 未使用の衛生用品を 100℃以上の雰囲気乾燥処理し、その衛生用品の質量を測定する。

(2) 水が吸収体に達し難くなるようなポケットを形成しうる伸縮材料（例えば、脚周り、ウエスト周り等の伸縮部材）が衛生用品に配置されている場合には、その伸縮部材に切り込みを入れることで、衛生用品を平らにする。

(3) 十分な水道水で満たされた水浴に、表面シートを下にして衛生用品を浸し、30分間放置する。

(4) 放置後、衛生用品を網の上に、表面シートを下にして載置し、20分水切りした後に、衛生用品の質量を測定する。

そして、水道水に浸す前後の質量差を最大吸収量と定義する。

[0058] 次いで、分解工程 S 1 2 は、前処理工程 S 1 1 により展開され膨潤した複数の使用済の衛生用品に物理的な衝撃を与えて、複数の使用済の衛生用品を、フィルム（裏面シート）、不織布（表面シート）及びコアラップと、吸収コア（例えば、吸収体及び高吸収性ポリマー）とに分解する。

[0059] 使用済の衛生用品は、前処理工程 S 1 1 により、展開されて平坦で、膨張により表面のいずれかの箇所がはち切れそうになっており、本実施の形態では、特に、温水の熱により、接着剤の接合力が低下された状態になっている。従って、分解工程 S 1 2 において、その状態の使用済の衛生用品に物理的な衝撃を加えることで、表面のいずれかの箇所のうち、特に接合力が低下さ

れた表面シート（不織布）と裏面シート（フィルム）との接合部分がはち切れる。それにより、その接合部分を裂く（剥がす）ことができる。物理的な衝撃としては、特に制限はないが、例えば、使用済の衛生用品よりも硬い素材でできた面に、使用済の衛生用品を叩きつける方法、使用済の衛生用品を互いに対面配置された一对のロールの間に挟んで通過させつつ両側から押圧する方法等が挙げられる。

[0060] 本実施の形態では、分解工程 S 1 2 は、回転軸が水平な回転ドラムの底部に、膨潤した複数の使用済の衛生用品を投入する投入する工程と、回転ドラムを回転軸周りに回転させて、複数の使用済の衛生用品を回転ドラムの上部に引き上げては、底部に叩きつける工程とを含んでいる。それにより、複数の使用済の衛生用品に物理的な衝撃を、安定的、継続的（連続的）かつ容易に加えることができる。回転ドラムとしては、例えば、横型洗濯機の洗濯槽の回転ドラムが挙げられ、よって分解工程 S 1 2 は既存の横型洗濯機（例えば、株式会社稲本製作所製、ECO-22B）を用いて実施できる。回転ドラムの大きさは、上記衝撃が実現可能であれば特に制限はないが、内径及び奥行は、例えば、50～150cm及び30～120cmが挙げられる。回転ドラムの回転速度は、上記衝撃が実現可能であれば特に制限はないが、例えば、30回／分～100回／分、が挙げられる。

[0061] また、使用済の衛生用品内に吸収された温水により、使用済の衛生用品の温度は比較的高温に保たれるが、接着剤の温度低下の抑制、並びに殺菌の効果の維持の観点から、回転ドラム内の雰囲気温度は70℃以上が好ましく、75℃以上がより好ましい。回転ドラム内の温度は使用済の衛生用品の取り扱いの観点から、98℃以下が好ましく、90℃以下がより好ましい。回転ドラム内の水はできるだけ少ないことが好ましく、少なくとも底部にて使用済の衛生用品が水面よりも下にならない程度に少ないことが好ましい。使用済の衛生用品が水面よりも下になると、使用済の衛生用品への衝撃が水に吸収され、所望の衝撃を使用済の衛生用品へ与え難くなる。回転ドラムを回転させている時間は、表面シート、裏面シート、コアラップ等と、吸収コア

とを分解することができる限り特に限定されないが、例えば、2～40分であり、好ましくは4～20分である。

[0062] 使用済の衛生用品は、物理的な衝撃により、表面シート（不織布）と裏面シート（フィルム）との接合部分がはち切れて、裂ける。それと同時に、その裂け目を介して、吸収体の内圧によって、使用済の衛生用品内の吸収コア（例えば、パルプ繊維及び高吸収性ポリマー）が外へ噴出してくる（飛び出してくる）。それにより、使用済の衛生用品を、表面シート（不織布）、裏面シート（フィルム）、コアラップ等と、吸収コア（例えば、パルプ繊維及び高吸収性ポリマー）とに、より確実に分解することができる。

[0063] 次いで、分離工程S13は、複数のフィルム（裏面シート）及び複数の不織布（表面シート）、コアラップ等と、吸収コア（例えば、パルプ繊維及び高吸収性ポリマー）とを分離する。ただし、不織布はフィルムに接合したまでもよい。上記分離方法としては、特に限定されないが、例えば、表面シート、裏面シート、コアラップ等を通さず、吸収コアを通すふるいを用いる方法が挙げられる。

[0064] 本実施の形態では、分離工程S13は、フィルム、不織布、コアラップ等と、吸収コアとを分離する前に、不活化剤を含む水溶液で高吸収性ポリマーを不活化する不活化工程S31と、フィルム及び不織布と、パルプ繊維、不活化された高吸収性ポリマー及び不活化により高吸収性ポリマーから排出された汚水を含む混合物とを分離する第1の分離工程S32とを含んでもよい。

[0065] 不活化工程S31では、第1の分離工程S32の前に、表面シート（不織布）、裏面シート（フィルム）及び吸収体（パルプ繊維及び高吸収性ポリマー）を、高吸収性ポリマーを不活化可能な不活化剤を含む水溶液に浸す。それにより、表面シート、裏面シート及びパルプ繊維に付着していた高吸収性ポリマーを不活化することができる。それにより、不活化の前には粘度の高い状態の高吸収性ポリマーを、不活化による脱水により、粘度の低い状態の高吸収性ポリマーにすることができる。

[0066] ここで、不活化剤は、特に限定するものではないが、酸（例えば、無機酸及び有機酸）、石灰、塩化カルシウム、硫酸マグネシウム、塩化マグネシウム、硫酸アルミニウム、塩化アルミニウム等が挙げられる。上記酸は、パルプ繊維に灰分を残留させないことから、好ましい。不活化剤として酸を用いる場合は、pHが、好ましくは2.5以下であり、そしてより好ましくは1.3～2.4である。pHが高すぎると、高吸収性ポリマーの吸水能力を十分に低下させることができない。また、殺菌能力が低下するおそれもある。pHが低すぎると、設備の腐食のおそれがあり、排水処理時の中和処理に多くのアルカリ薬品が必要となる。

[0067] 上記無機酸としては、例えば、硫酸、塩酸、硝酸が挙げられるが、塩素を含まないこと、コスト等の観点から硫酸が好ましい。一方、上記有機酸としては、クエン酸、酒石酸、グリコール酸、リンゴ酸、コハク酸、酢酸、アスコルビン酸等が挙げられるが、排泄物に含まれる金属イオンと錯体を形成可能な酸、例えば、クエン酸、酒石酸、グルコン酸等のヒドロキシカーボネート系有機酸が特に好ましい。なお、排泄物に含まれる金属イオンとしては、カルシウムイオンが挙げられる。排泄物に含まれる金属イオンと錯体を形成可能な酸のキレート効果により、排泄物中の金属イオンがトラップされ除去可能であるためである。また、クエン酸は、その洗浄効果により、高い汚れ成分除去効果が期待できる。

なお、pHは水温により変化するため、本開示におけるpHは、水溶液温度20℃で測定したpHをいうものとする。

[0068] 不活化工程S31の処理温度、すなわち、不活化剤を含む水溶液の温度は、不活化の反応が進む限り、特に限定されない。その処理温度は、室温でもよいし、室温よりも高くしてもよいが、例えば、15～30℃が挙げられる。また、不活化工程S31の処理時間、すなわち、不活化剤を含む水溶液に表面シート、裏面シート及び吸収体を浸す時間は、高吸収性ポリマーが不活化され、脱水される限り、特に限定されないが、例えば、2～60分が挙げられ、好ましくは5～30分である。また、不活化工程S31の水溶液の量

、すなわち、不活化剤を含む水溶液の量は、不活化の反応が進む限り、特に限定されない。水溶液の量は、例えば、使用済の衛生用品 100 質量部に対し、好ましくは 300～3000 質量部であり、より好ましくは 500～2500 質量部であり、さらに好ましくは 1000～2000 質量部である。

[0069] 第 1 の分離工程 S 3 2 では、表面シート（不織布）、裏面シート（フィルム）及びコアラップと、パルプ繊維、不活化された高吸収性ポリマー及び不活化により高吸収性ポリマーから排出された汚水を含む混合物とを分離する。ただし、汚水は、不活化工程 S 3 1 において、不活化剤を含む水溶液による脱水により、高吸収性ポリマーから放出された水分、すなわち、排泄物由来の液体及び温水由来の水を含む汚水である。

[0070] 第 1 の分離工程 S 3 2 において、表面シート及び裏面シートと、パルプ繊維、高吸収性ポリマー及び汚水とを分離する方法は、特に限定するものではない。例えば、不活化工程により生成した生成物（表面シート、裏面シート、パルプ繊維、高吸収性ポリマー、汚水等）を、目開き 5～100 mm、好ましくは目開き 10～60 mm のスクリーンを通して排出する。それにより、パルプ繊維、高吸収性ポリマー及び汚水は排水中に、表面シート及び裏面シートはスクリーン上に残ることで、それら生成物を分離することができる。なお、スクリーン上にはその他の不織布、フィルム等の大きな形状物が残存してもよい。特に、不活化の前には、高吸収性ポリマーは粘度の高い状態にあるため、表面シート、裏面シート及びパルプ繊維に付着した高吸収性ポリマーを分離することは容易とまではいえない。しかし、不活化の後には、脱水により、高吸収性ポリマーは粘度の低い状態になるので、表面シート、裏面シート及びパルプ繊維に付着した高吸収性ポリマーを、表面シート、裏面シート及びパルプ繊維から容易に分離することができる。従って、衛生用品の構成部材を効率よく分離・回収することができる。

[0071] 本実施の形態では、分離工程 S 1 3 はフィルムと他の部材との接合部分の接着剤を溶かす溶剤により、接合部分の接着剤を除去する第 2 の分離工程 S 3 3 をさらに含んでもよい。本実施の形態では、フィルムと不織布と吸収体

との各接合部分の接着剤を溶解する溶剤により、各接合部分の接着剤を除去する。

[0072] 第2の分離工程S33では、フィルム（裏面シート）と他の部材（表面シートの不織布、表面シート、裏面シートの表面に残存する吸収体等）との接合部分の接着剤を溶剤により除去する。それにより、フィルムと他の部材とを、破断等せずにそのままの形状を維持したまま、互いに分離することができる。従って、衛生用品のフィルムのような構成部材を効率よく回収することができる。また、フィルムに接着剤を残さずに、フィルムと他の部材とを分離することができるので、フィルムを純度の高い樹脂として再利用可能にできる。それにより、フィルムの再利用のときに接着剤が悪影響を及ぼすことを抑制できる。不織布についてもフィルムと同様である。

[0073] 第2の分離工程S33に用いる溶剤としては、接着剤を溶解することが可能であれば特に制限はないが、例えば、テルペン炭化水素、テルペンアルデヒド及びテルペンケトンのうちの少なくとも一つを含むテルペンが挙げられる。この工程では、テンペルを含む水溶液が用いられ、水溶液中のテンペルの濃度は、例えば、0.05質量%以上2質量%以下が挙げられる。好ましくは0.075～1質量%である。テルペンの濃度が低すぎると、接合部分の接着剤を溶解することができないおそれがある。テルペンの濃度が高すぎると、コストが高くなるおそれがある。また、テンペルは、ホットメルト接着剤のような接着剤を溶解するだけでなく、油汚れ洗浄効果も有する。そのため、例えば、裏面シート等の衛生用品の構成部材に印刷がある場合、テンペルはその印刷インクも分解除去できる。

[0074] テルペン炭化水素としては、例えば、ミルセン、リモネン、ピネン、カンファー、サピネン、フェランドレン、パラシメン、オシメン、テルピネン、カレン、ジンギベレン、カリオフィレン、ビスボレン、セドレンが挙げられる。中でも、リモネン、ピネン、テルピネン、カレンが好ましい。また、テルペンアルデヒドとしては、例えば、シトロネラル、シトラール、シクロシトラール、サフラナール、フェランドラール、ペリルアルデヒド、ゲラニ

アール、ネラールが挙げられる。テルペンケトンとしては、例えば、ショウノウ、ツヨシが挙げられる。テルペンの中でもテルペン炭化水素が好ましく、リモネンが特に好ましい。リモネンには、d-リモネン、l-リモネン、ジペンテン（d,l-リモネン）の3種類があるが、いずれも好ましく用いることができる。テルペンは1種単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせ使用することもできる。

[0075] 第2の分離工程S33の処理温度、すなわち、溶剤を含む水溶液の温度は、接着剤の溶解が進み、使用済の衛生用品を構成部材に分解する限り、特に限定されない。その処理温度は、室温でもよいし、室温よりも高くしてもよいが、例えば、15～30℃が挙げられる。また、第2の分離工程S33の処理時間、すなわち、溶剤を含む水溶液に表面シート、裏面シート及び吸収体を浸す時間は、接着剤の溶解が進み、使用済の衛生用品を構成部材に分解する限り、特に限定されない。その処理時間は、例えば、2～60分が挙げられ、好ましくは5～30分である。第2の分離工程S33の水溶液の量、すなわち、溶剤を含む水溶液の量は、接着剤の溶解が進み、使用済の衛生用品を構成部材に分解する限り特に限定されない。水溶液の量は、例えば、使用済の衛生用品100質量部に対し、好ましくは300～3000質量部であり、より好ましくは500～2500質量部である。第2の分離工程S33により、フィルム、不織布、吸収体等に残存する接着剤の量を、フィルム、不織布、吸収体等に対して1質量%以下にできる。

[0076] なお、本実施の形態では、他の好ましい態様として、上記不活化工程S31において、上記第2の分離工程S33を併せて行ってもよい。すなわち、表面シート、裏面シート及びパルプ繊維に付着した高吸収性ポリマーを不活化させつつ、表面シート、裏面シート及びパルプ繊維に付着した接着剤を溶解させてもよい。この場合、表面シート、裏面シート、パルプ繊維及び高吸収性ポリマーを浸漬させる水溶液としては、不活化剤及び溶剤の両方を含む水溶液を用いる。それにより、上記不活化工程S31において、裏面シート（フィルム）と、表面シート（不織布）と、吸収体（パルプ繊維及び高吸収

性ポリマー)とを水溶液中で概ね分離した状態にできる。そして、その後の第1の分離工程において、裏面シート(フィルム)及び表面シート(不織布)と、吸収体(パルプ繊維及び高吸収性ポリマー)とを分離でき、第2の分離工程S33を省略できる。この場合、裏面シート(フィルム)と表面シート(不織布)とは、接着剤の除去により、実質的に分離される。

[0077] 本実施の形態では、分離工程S13は、接合部分の接着剤を除去する工程の後に、フィルムを室温よりも高い温度の雰囲気又は熱風により乾燥させ、溶剤を除去する第1の乾燥工程S34をさらに含んでもよい。本実施の形態では、本工程にて不織布をも乾燥させる。

[0078] 使用済の衛生用品の再利用においては、殺菌は極めて重要である。第1の乾燥工程S34では、分離されたフィルム(裏面シート)及び不織布(表面シート)を、高温の雰囲気又は熱風等で乾燥させる工程を行う。乾燥温度は、例えば、105～210℃が挙げられ、好ましくは110～190℃である。乾燥時間は、乾燥温度にもよるが、例えば、10～120分が挙げられ、好ましくは15～100分である。それにより、フィルム及び不織布の表面に残存する溶剤を蒸発させて除去するだけでなく、フィルム及び不織布を高温の雰囲気又は熱風等で殺菌することができる。それにより、溶剤を除去しつつ、殺菌(消毒)の効果を奏することも可能となる。

[0079] 一方、本実施の形態では、分離工程S13は、分離された混合物からパルプ繊維を分離する第3の分離工程S35を含んでもよい。第3の分離工程S35では、分離された混合物(パルプ繊維、高吸収性ポリマー及び汚水を含む)からパルプ繊維を分離する方法としては、特に限定されないが、例えば、分離された混合物を目開き0.1～4mm、好ましくは目開き0.15～2mmのスクリーンを通して排出する。それにより、高吸収性ポリマー及び汚水は排水中に、パルプ繊維(主に表面に高吸収性ポリマーが残存)はスクリーン上に残ることで、混合物からパルプ繊維を分離できる。このパルプ繊維は不純物を多く含むが、用途によっては、この状態で再利用可能である。

分離されたパルプ繊維には、高吸収性ポリマーが付着しており、分離されたパルプ繊維と、当該パルプ繊維に付着している高吸収性ポリマーとは、水と、所定の割合で混合されて、混合液として、オゾン処理工程 S 3 6 に進む。

[0080] 本実施の形態では、分離工程 S 1 3 は、高吸収性ポリマー及びパルプ繊維と、それらの連結構造体と、水とを含む混合液を、オゾンを含む水溶液で処理し、パルプ繊維付着する高吸収性ポリマーを低分子量化し、可溶化して除去するオゾン処理工程 S 3 6 を含んでいる。

[0081] 使用済の衛生用品においては、パルプ繊維及び高吸収性ポリマーを含む吸収体等において、(i) 高吸収性ポリマーが体液等の液体を吸収するにつれて肥大化し、パルプ繊維を巻き込む、(i i) 肥大化した高吸収性ポリマー同士が、パルプ繊維を巻き込みつつゲルブロッキングを生じさせる等により、複数の高吸収性ポリマーと、複数のパルプ繊維とが、連結構造体を形成する場合が多い。上記混合液には、遊離のパルプ繊維及び遊離の高吸収性ポリマーに加え、複数の高吸収性ポリマー及び複数のパルプ繊維により構成される連結構造体が含まれる。

[0082] オゾン処理工程 S 3 6 では、混合液（処理液）に含まれる高吸収性ポリマーを、水溶液中のオゾンにより酸化分解して、水溶液に可溶化させることにより除去する。

高吸収性ポリマーが酸化分解し、水溶液に可溶化した状態とは、高吸収性ポリマー、並びに連結構造体が、2 mm のスクリーンを通過する状態をいう。それにより、高吸収性ポリマー等の不純物を、混合液（処理液）から除去し、純度の高いパルプ繊維を生成できる。また、オゾン処理により、パルプ繊維の二次殺菌、漂白並びに消臭を行うことができる。

[0083] 図 2 は、オゾン処理工程 S 3 6 を実行する装置 2 の構成の一例を示す概略図である。装置 2 は、水と、第 3 の分離工程 S 3 5 で分離されたパルプ繊維と、高吸収性ポリマーとを含む混合液 5 1 を貯蔵する混合液貯蔵部 3 と、混合液 5 1 中に含まれる高吸収性ポリマーを、酸化分解してパルプ繊維から除

去するオゾン処理部４とを備えている。

[0084] 混合液貯蔵部３は、混合液タンク１２と攪拌機１３とを含む。混合液タンク１２は、配管６１を介して供給された、混合液５１を貯蔵する。攪拌機１３は、混合液５１中のパルプ繊維及び高吸収性ポリマーが水と分離して混合液５１の下方へ沈まないように、混合液タンク１２中の混合液５１を攪拌する。

[0085] 一方、オゾン処理部４は、供給ポンプ２１と処理槽３１とオゾン供給装置４１と送出ポンプ２２とオゾン分解装置３４とを含む。処理槽３１は、処理液５２として酸性水溶液を有する。処理槽３１は、混合液供給口３２と、処理液排出口３３と、オゾン含有ガス供給口４３とを備えている。混合液供給口３２は、混合槽３１の上部に配置され、混合液５１を処理槽３１に供給する。処理液排出口３３は、混合槽３１の下部に配置されており、処理液５２を排出する。オゾン含有ガス供給口４３は、混合槽３１の下部、具体的には、処理液排出口３３よりも上部に配置されており、オゾン含有ガス５３を処理槽３１内に送出する。

[0086] 具体的には、供給ポンプ２１は、配管６２を介して混合液タンク１２の混合液５１を、混合液供給口３２から、処理槽３１の中に第１の流量で連続的に供給する。オゾン供給装置４１は処理槽３１に、オゾン含有ガス５３を供給する。オゾン供給装置４１のオゾン発生装置４２としては、例えば、エコデザイン株式会社製オゾン水曝露試験機ＥＤ－ＯＷＸ－２、三菱電機株式会社製オゾン発生装置ＯＳ－２５Ｖ等が挙げられる。オゾン含有ガス５３は、オゾンを含んだ他の種類ガスであり、例えば、オゾンを含んだ酸素ガスが挙げられる。オゾン含有ガス供給口４３は、配管６５を介して処理槽３１に供給されるオゾン含有ガス５３を処理槽３１内に送出し、処理槽３１の下部（好ましくは底部）に配置される。オゾン含有ガス供給口４３は、オゾン含有ガス５３を複数の細かい気泡として処理液５２中に処理液５２（処理槽３１）の下部から上部へ向かって連続的に供給する。送出ポンプ２２は、配管６３を介して処理槽３１内の処理液５２を、処理液排出口３３から処理槽３１

の外に第2の流量で連続的に排出する。オゾン分解装置34は、処理槽31の上部に蓄積したオゾン含有ガス53を配管64経由で受け取り、オゾンを無害化して外部へ放出する。なお、処理槽31内の処理液52は、オゾン処理工程S36の開始前には処理液52のみであり、開始後は処理液52と混合液51とが混合された液となるが、本実施の形態では処理液52と混合液51とが混合された液も含めて、処理槽31内の液を処理液52とする。

[0087] 次に、オゾン処理工程S36の具体的方法について説明する。

第3の分離工程S35にて分離されたパルプ繊維及び高吸収性ポリマーは、予め設定された濃度になるように水と混合されて混合液51となる。混合液51のパルプ繊維の濃度は、処理槽31に投入され、処理液52と混合された状態で、予め設定された濃度になるように設定される。混合液51は、配管61を介して混合液タンク12に供給され、貯蔵される。パルプ繊維及び高吸収性ポリマーの比重は1より大きいので、パルプ繊維及び高吸収性ポリマーが、水と分離しないように、混合液51は混合液タンク12内で攪拌機13により攪拌される。

[0088] そして、混合液タンク12内の混合液51は、供給ポンプ21により流量が制御され、配管62を介して、混合液供給口32から処理槽31に、第1の流量で連続的に供給される。処理液52は酸性水溶液であり、比重は概ね1である。従って、パルプ繊維及び高吸収性ポリマーは、処理液52の上部から下部へ向かって沈降してゆく。

[0089] 一方、オゾン発生装置42で生成されたオゾン含有ガス53は、配管65を介して処理槽31に供給され、処理槽31のオゾン含有ガス供給口43から処理液52内に細かい気泡（例えば、マイクロバブル又はナノバブル）の状態で放出される。すなわち、オゾン含有ガス53は、処理液52の下部から上部へ向かって上昇してゆく。

[0090] そして、処理液52内を、下方に向かって移動する、すなわち、下降するパルプ繊維及び高吸収性ポリマーと、上方に向かって移動する、すなわち、上昇するオゾン含有ガス53とが、対向して進みつつ衝突し合う。そして、

オゾン含有ガス 53 は、パルプ繊維及び高吸収性ポリマー、並びに連結構造体の表面に付着する。オゾン含有ガス 53 中のオゾンが、遊離の高吸収性ポリマーを酸化分解して、処理液 52 に溶解させる。それにより、パルプ繊維上の高吸収性ポリマーがパルプ繊維から除去される。そして、パルプ繊維は、処理槽 31 の底部へ下降し、オゾン含有ガス 53 は、処理槽 31 の上部の空間へ抜ける。

[0091] 遊離の高吸収性ポリマー及び遊離のパルプ繊維、並びに連結構造体では、相対的に比重の高い遊離の高吸収性ポリマーと、高吸収性ポリマーを含む連結構造体とが、相対的に比重の低い遊離のパルプ繊維よりも沈降性が高い傾向にある。一方、オゾン含有ガスは、オゾンを消費して、高吸収性ポリマー及びパルプ繊維を処理しながら上昇するため、下方の位置に存在するオゾン含有ガスは、上方の位置に存在するオゾン含有ガスよりも、オゾンの含有率が高い（すなわち、フレッシュである）傾向にある。

[0092] 従って、下方への移動が相対的に速い、遊離の高吸収性ポリマー及び連結構造体を、よりフレッシュなオゾン含有ガスで的確に酸化分解して遊離のパルプ繊維を形成することができる。一方、遊離のパルプ繊維は、下方への移動が相対的に遅いので、オゾン含有ガスが、時間をかけて遊離のパルプ繊維並びに形成するセルロースナノファイバー化用パルプ繊維）を処理することができる。具体的には、オゾン含有ガス中のオゾンが、パルプ繊維と対向しつつ衝突することにより、パルプ繊維（並びにセルロースナノファイバー化用パルプ繊維）のリグニンを分解することができる。

[0093] その後、処理槽 31 の底部の処理液 52（セルロースナノファイバー化用パルプ繊維を含む）は、送出ポンプ 22 の流量制御により、配管 63 を介して処理槽 31 の処理液排出口 33 から処理槽 31 の外に第 2 の流量で連続的に排出される。処理槽 31 の上部に蓄積したオゾン含有ガス 53 のオゾンはオゾン分解装置 34 で無害化されて外部へ放出される。

[0094] このように、混合液 51 が処理槽 31 の上部から処理槽 31 の中に第 1 の流量で連続的に供給され、処理液 52 が処理槽 31 の下部（底部）から処理

槽 3 1 の外に第 2 の流量で連続的に排出される。それにより、処理槽 3 1 内に上部から下部への連続的かつ安定的な流体（パルプ繊維を含む）の流れを強制的に生じさせることができる。

[0095] 処理槽 3 1 から排出される処理液 5 2 は、高吸収性ポリマーを除去された、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維を含み、かつ、高吸収性ポリマーが酸化分解されて生成した低分子量の有機物を含んでいる。セルロースナノファイバー化用パルプ繊維は、送出ポンプ 2 2 より下流側の工程、例えば、後述される第 4 の分離工程 S 3 7 にて回収される。

[0096] 本方法は、少なくとも、パルプ繊維及び高吸収性ポリマーを含む混合液 5 1 を、高吸収性ポリマーを溶解可能な処理液 5 2 を有する処理槽 3 1 の中に、第 1 の流量で連続的に供給しつつ、高吸収性ポリマーが除去されたセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を含み、かつ、高吸収性ポリマーが酸化分解されて生成した低分子量の有機物を含む処理液 5 2 を、処理槽 3 1 の外に、第 2 の流量で連続的に排出する。このような構成を有することにより、処理槽 3 1 における混合液 5 1 を供給する混合液供給口 3 2 から処理液 5 2 を排出する処理液排出口 3 3 へ向かって連続的かつ安定的な流体（パルプ繊維を含む）の流れを強制的に発生させることができる。その流体の流れ、すなわち、水流により、パルプ繊維及び高吸収性ポリマーの処理量を多くしても、高吸収性ポリマーを処理（可溶化）し、そしてパルプ繊維を処理することができる。

[0097] ここで、第 1 の流量と第 2 の流量は同一であることが好ましい。第 1 の流量及び第 2 の流量を同一にすることにより、処理槽 3 1 内の処理液 5 2 の量を一定に保つことができ、安定的に連続的な処理が可能である。ただし、処理槽 3 1 内の処理液 5 2 の量を略一定に保つことができると、すなわち、処理槽 3 1 内の処理液 5 2 の量が大幅に増加又は減少しなければ、第 1 の流量と第 2 の流量とは経時的に変動してもよい。すなわち、第 1 の流量と第 2 の流量とは、常時、完全に同一である必要はなく、経時的に平均して略同一であればよい。ここで、略同一とは、第 1 の流量と第 2 の流量との差が 5 質量

%以内であることをいう。この場合にも、安定的に連続的な処理が可能である。

[0098] 処理液 5 2 にオゾン含有ガス 5 3 を供給する場合、処理液 5 2 中のオゾン濃度は、高吸収性ポリマーを酸化分解することができる濃度であれば、特に限定されないが、例えば、1～50 質量 ppm が挙げられ、好ましくは 2～40 質量 ppm であり、さらに好ましくは 3～30 質量 ppm である。処理液 5 2 中のオゾン濃度が低過ぎると、高吸収性ポリマーを完全に可溶化できず、パルプ繊維に高吸収性ポリマーが残存するおそれがある。逆に、処理液 5 2 中のオゾン濃度が高過ぎると、酸化力も高まるため、パルプ繊維に損傷を与えるおそれがあるとともに、安全性にも問題を生じる可能性がある。オゾン処理温度は、高吸収性ポリマーを酸化分解できる温度であれば、特に限定されないが、例えば、室温のままでよいし、室温より高くしてもよい。

[0099] 処理液 5 2（水溶液）中のオゾンの濃度は以下の方法で測定される。

（１）ヨウ化カリウム約 0.15 g 及び 10% のクエン酸溶液 5 mL を入れた 100 mL メスシリンダーに、オゾンが溶解した処理液 5 2 を 85 mL 入れて反応させる。

（２）反応後の処理液 5 2 を、200 mL の三角フラスコに移動し、三角フラスコ内にデンプン溶液を加え、紫色に着色させた後、0.01 mol/L のチオ硫酸ナトリウムで無色になるまで攪拌しながら滴定し、添加量 a (mL) を記録する。

（３）以下の式を用いて、水溶液中のオゾンの濃度を算出する。

水溶液中のオゾンの濃度（質量 ppm）を以下の式：

$$\begin{aligned} & \text{水溶液中のオゾンの濃度（質量 ppm）} \\ & = a \text{ (mL)} \times 0.24 \times 0.85 \text{ (mL)} \end{aligned}$$

により算出する。

[0100] オゾン含有ガス 5 3 中のオゾン濃度は、好ましくは 40～200 g/m³ であり、より好ましくは 40～150 g/m³ であり、さらに好ましくは 40～100 g/m³ である。オゾン含有ガス 5 3 中のオゾン濃度が低過ぎると高吸

収性ポリマーを完全に可溶化できず、高吸収性ポリマーが残存するおそれがある。オゾン含有ガス 5 3 中の濃度が高過ぎるとパルプ繊維の損傷、安全性の低下、製造原価の増加につながるおそれがある。なお、オゾン含有ガス 5 3 中のオゾン濃度は、例えば、紫外線吸収式のオゾン濃度計（例えば、エコデザイン株式会社製：オゾンモニタ O Z M - 5 0 0 0 G）により測定することができる。

[0101] 処理液 5 2 中のパルプ繊維及び高吸収性ポリマーの濃度は、処理液 5 2 中のオゾンにより高吸収性ポリマーを酸化分解することができる濃度であれば、特に限定されないが、例えば、0.1～20 質量%が挙げられ、好ましくは 0.2～10 質量%であり、さらに好ましくは 0.3～5 質量%である。パルプ繊維の濃度が高過ぎると、高吸収性ポリマーを完全に可溶化できず、パルプ繊維に高吸収性ポリマーが残存するおそれがある。逆に、パルプ繊維の濃度が低過ぎると、酸化力も高まるため、パルプ繊維に損傷を与えるおそれがあるとともに、安全性にも問題を生じる可能性がある。混合液 5 1 中のパルプ繊維及び高吸収性ポリマーの濃度は、上記処理液 5 2 中のパルプ繊維及び高吸収性ポリマーの濃度と、処理液 5 2 の量とに基づいて適宜設定される。

[0102] パルプ繊維及び高吸収性ポリマーを含む処理液 5 2 にオゾンを供給する場合、処理液 5 2 は酸性であることが好ましい。より好ましくは、処理液 5 2 の pH は 0 より大きく 5.0 以下であり、さらに好ましくは 1.5～2.5 である。酸性の状態では処理することで、オゾンの失活が抑制され、オゾンによる高吸収性ポリマーの酸化分解効果が向上し、短時間で高吸収性ポリマーを酸化分解できる。処理液の pH を保つためには、混合液 5 1 の pH を処理液 5 2 の pH と同じにして、混合液 5 1 を処理槽 3 1 に供給してもよい。あるいは、処理液 5 2 の pH を pH センサで監視し、pH が中性側に変動したときには、所定の酸性溶液を変動幅に応じた量だけ処理液 5 2 に付加してもよい。

[0103] 処理槽 3 1 中の処理液 5 2（混合液 5 1 を含む）の量は、高吸収性ポリマ

一を酸化分解することができる量であれば、特に限定されないが、処理槽 31 中の処理液 52 の体積 V （単位：L）とパルプ繊維の質量 W （単位：kg）が、 $30 \leq V/W \leq 1000$ 、を満たすことが好ましい。より好ましくは、 $50 \leq V/W \leq 400$ であり、さらに好ましくは、 $100 \leq V/W \leq 200$ である。 V/W が小さ過ぎると、高吸収性ポリマーを完全に可溶化できず高吸収性ポリマーが残存するおそれがある。 V/W が大き過ぎると、製造原価の増加にするおそれがある。なお、処理槽 31 の体積 V としては、特に制限はないが、例えば、50～80 L が挙げられる。

[0104] オゾン含有ガスの流量 R_0 （単位：L/分）と処理槽 31 中の処理液 52 の体積 V （単位：L）は、 $0.01 \leq R_0/V \leq 1.25$ 、を満たすことが好ましい。より好ましくは、 $0.03 \leq R_0/V \leq 1.0$ であり、さらに好ましくは、 $0.06 \leq R_0/V \leq 0.75$ である。 R_0/V が小さすぎると高吸収性ポリマーを完全に可溶化できずパルプ繊維に高吸収性ポリマーが残存するおそれがある。 R_0/V が大きすぎるとパルプ繊維の損傷、安全性の低下、製造原価の増加につながるおそれがある。なお、オゾン含有ガスの流量 R_0 としては、特に制限はないが、例えば、3～6 L/分が挙げられる。

[0105] パルプ繊維が処理槽 31 内に存在する時間、すなわち、パルプ繊維が処理液 52 中で処理される時間（以下、「槽内処理時間」ともいう。）は、高吸収性ポリマーを酸化分解することができる時間であれば、特に限定されない。槽内処理時間は、処理液 52 のオゾン濃度が高ければ短くてよく、処理液 52 のオゾン濃度が低ければ長い時間を要する。槽内処理時間としては、例えば、2分～60分が挙げられ、好ましくは5分～30分である。処理液 52 中のオゾンの濃度（質量 ppm）と槽内処理時間（分）の積（以下「CT 値」ともいう。）は、好ましくは100～6000 ppm・分であり、より好ましくは200～4000 ppm・分であり、さらに好ましくは300～2000 ppm・分である。CT 値が小さ過ぎると、高吸収性ポリマーを完全に可溶化することができず、回収したパルプ繊維に高吸収性ポリマーが残存するおそれがある。CT 値が大き過ぎると、パルプ繊維の損傷、安全性の

低下、製造原価の増加につながるおそれがある。

[0106] パルプ繊維が処理槽 3 1 内に存在する間に、高吸収性ポリマーは、オゾンにより低分子量成分に酸化分解され、処理液 5 2 に溶解する。処理液 5 2 中に溶解した低分子量成分は、処理液 5 2 と共に排出される。さらに、この工程では、オゾンの殺菌作用により、使用済の衛生用品が一次消毒される。

[0107] 本実施の形態では、好ましい態様として、オゾン処理工程 S 3 6（連続処理工程）が、混合液 5 1 を、処理槽 3 1 の上部から連続的に供給しつつ、処理液 5 2 を、処理槽 3 1 の下部から連続的に排出する工程、を含んでいる。混合液 5 1 中のパルプ繊維及び高吸収性ポリマーの比重は、処理液 5 2 の水の比重よりも大きいため、パルプ繊維及び高吸収性ポリマー、並びに連結構造体は、自然に沈降する。

[0108] 本実施の形態では、好ましい態様として、高吸収性ポリマーを溶解可能な処理液 5 2 が、高吸収性ポリマーを溶解可能に酸化分解するオゾン含有ガスを含む水溶液である。オゾン処理工程 S 3 6（連続処理工程）は、オゾン含有ガスの複数の気泡を処理液 5 2 の下部から上部へ向かって連続的に送出する送出工程、をさらに含んでいる。このような、本方法の好ましい態様では、処理液 5 2 において、オゾン含有ガスが上昇し、パルプ繊維及び高吸収性ポリマーが下降する、すなわち、対向流になっている。それにより、パルプ繊維及び高吸収性ポリマーと、オゾン含有ガスとの接触確率を高めることができる。また、パルプ繊維及び高吸収性ポリマーがより深く沈降するほど、より高い濃度のオゾン含有ガスと接触することができる。従って、処理液 5 2 における浅いところで接触したオゾン含有ガスだけでは処理液 5 2 中に溶解し切れなかった高吸収性ポリマーを、処理液 5 2 における深いところで高濃度のオゾン含有ガスと接触させることができる。それにより、高吸収性ポリマーを確実に処理液 5 2 に溶解できる。よって、高吸収性ポリマーを確実に処理液中に溶解させて、繊維から除去することができる。

[0109] 本実施の形態では、好ましい態様として、上述の送出工程が、オゾン含有ガスを、マイクロバブル又はナノバブルの状態で送出する工程を含んでいる

。ただし、マイクロバブルとは、直径が $1 \sim 1000 \mu\text{m}$ 程度、好ましくは $10 \sim 500 \mu\text{m}$ 程度の気泡であり、ナノバブルとは、直径が $100 \sim 1000 \text{nm}$ 程度、好ましくは $100 \sim 500 \text{nm}$ 程度の気泡をいう。マイクロバブル又はナノバブルは、このように微細な気泡であり、単位体積当たりの表面積が大きく、液中の上昇速度が遅い、という性質を有する。そこで本方法では、好ましい態様として、そのような微細な気泡のオゾン含有ガスを処理槽31の処理液52の下部から上部に向けて送出する。

[0110] 一方、パルプ繊維及び高吸収性ポリマーは、上部から下部へ向かって移動する。このとき、微細な気泡は上昇速度が遅いため、気泡がパルプ繊維に接触する確率を高められる。さらに、微細な気泡はパルプ繊維の表面での占有領域が狭いため、より多くの気泡がパルプ繊維の表面に接触できる。それにより、パルプ繊維及び高吸収性ポリマー、並びに連結構造体を微細な気泡で満遍なく包み込むことができ、それらとオゾン含有ガスとの接触面積をより増加させることができる。さらに、より多くの気泡がパルプ繊維の表面に接触することで、気泡の浮力により、パルプ繊維及び高吸収性ポリマー、並びに連結構造体の沈降性を低下させ、それらとオゾン含有ガスとの接触時間をより増加させることができる。これらにより、高吸収性ポリマーをより確実に処理液52中に溶解させて、パルプ繊維から除去することができる。

[0111] 本実施の形態では、好ましい態様として、処理液52は酸性水溶液であり、例えば、 $\text{pH} 2.5$ 以下の酸性水溶液である。その場合、混合液51中の高吸収性ポリマーに部分的に吸水能力が残存していた場合でも、高吸収性ポリマーの吸水膨張を抑制することができる。それにより、高吸収性ポリマーを処理液52に短時間で溶解できて、高吸収性ポリマーをより確実に除去できる。特に、処理液52がオゾン含有水溶液の場合には、オゾン含有水溶液中のオゾンを失活し難くできるので、高吸収性ポリマーをより短時間で酸化分解でき、溶解できて、高吸収性ポリマーを繊維からより確実に除去できる。

[0112] また、他の好ましい実施の形態として、処理槽31の構成は、図2以外の

他の構成であってもよい。図3は、図1のオゾン処理工程の装置2の他の構成例を示す概略図である。図3の装置2は、図2の装置2と比較して、オゾン処理部4の配管63が、二つのU字管を互いに逆様かつ連続的に接続した連続U字管構造を有し、送出ポンプ22を省略している点で相違する。その場合、配管63が処理液52で満たされ、かつ、処理槽31内の処理液52の液面の高さが配管63で接続された次工程の槽内の液の液面の高さよりも高い場合、サイフォンの原理により処理液52は配管63を介して次工程の槽へ排出される。従って、処理の開始前に初期的に、処理槽31内の処理液52の液面の高さと次工程の槽内液の液面の高さとを同じにしておくと、処理の開始により、処理槽31内に混合液51を連続的に第1の流量で供給すると、サイフォンの原理で処理液52は第2の流量＝第1の流量で配管63を介して次工程の槽へ排出されることになる。ただし、次工程の槽内の液の液面の高さについては、処理中も処理の開始前の高さを維持するようにする。この場合、送出ポンプ22が不要であり、かつ送出ポンプ22の第2の流量の制御が不要となる。

[0113] 本実施の形態では、分離工程S13は、さらに、処理槽31から排出された処理液52からパルプ繊維を分離する第4の分離工程S37と、分離されたパルプ繊維を乾燥する第2の乾燥工程S38とを含んでいてもよい。

[0114] 第4の分離工程S37では、処理槽31から排出された処理液52からパルプ繊維を分離する方法としては、特に限定されないが、例えば、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維を含む処理液52を、例えば、目開き0.15～2mmのスクリーンメッシュを通過させる方法が挙げられる。セルロースナノファイバー化用パルプ繊維を含む処理液52を目開き0.15～2mmのスクリーンメッシュを通過させると、高吸収性ポリマーの酸化分解による生成物を含む排水はスクリーンを通過する。一方、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維はスクリーン上に残る。

[0115] 続く、第2の乾燥工程S38では、分離されたパルプ繊維を、高温の雰囲気又は熱風等で乾燥させる。乾燥温度は、例えば、105～210℃が挙げ

られ、好ましくは $110\sim 190^{\circ}\text{C}$ である。乾燥時間は、乾燥温度にもよるが、例えば、 $10\sim 120$ 分が挙げられ、好ましくは $15\sim 100$ 分である。それにより、パルプ繊維の表面に残存する溶剤が蒸発して除去されて、高吸収性ポリマー混率の極めて低い、純度の高いパルプ繊維を回収できる。従って、衛生用品の構成部材を効率よく回収できる。また、パルプ繊維を高温の雰囲気又は熱風等で殺菌（消毒）できる。

[0116] 本開示では、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維は、 0.1 質量%以下のリグニン含有率を有し、そして好ましくは 0.08 質量%以下、そしてより好ましくは 0.06 質量%以下のリグニン含有率を有する。そうすることにより、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維がセルロースナノファイバー化性に優れる。

[0117] セルロースナノファイバー化用パルプ繊維のリグニン含有率は、愛媛県農林水産部農業指導課から昭和63年3月に発行された「土壌診断の手引き記載の方法」の第85頁～第87頁に記載の方法に従って測定することができる。以下、概要を転記する。

<試薬の準備>

(1) 温度： $20\pm 5^{\circ}\text{C}$ 及び湿度： $65\pm 5\%\text{RH}$ の恒温恒湿室に、 120°C で60分乾燥したセルロースナノファイバー化用パルプ繊維とを準備し、24時間静置する。

(2) 標準試薬として、市販のリグニン（95%）を準備する。

(3) 500mL ビーカーに、ピロリン酸ナトリウム（ $\text{Na}_4\text{P}_2\text{O}_5\cdot 10\text{H}_2\text{O}$ ） 22.3g を計量し、脱イオン水約 400mL を加えて、ピロリン酸ナトリウムを溶解させ、ピロリン酸ナトリウム水溶液を作成する。

(4) 別の 500mL ビーカーに水酸化ナトリウム 10g を計量し、脱イオン水約 200mL を加え、水酸化ナトリウムを溶解させ、水酸化ナトリウム水溶液を作成する。

ピロリン酸ナトリウム水溶液及び水酸化ナトリウム水溶液を放冷し、それらを 1L のメスフラスコに加え、脱イオン水にて定容化し、ピロリン酸抽出

液を作成する。

[0118] <前操作>

(5) リグニン 2 g を、100 mL の三角フラスコ A に計量する。

(6) セルロースナノファイバー化用パルプ繊維 2 g を、別の 100 mL の三角フラスコ B に計量する。

(7) 三角フラスコ A 及び三角フラスコ B のそれぞれに、ピロリン酸抽出液 20 mL を添加し、3 分間振とうする。

(8) 三角フラスコ A 及び三角フラスコ B を 15 分静置した後、それぞれ、No. 6 濾紙にてろ過し、リグニン濾液及びセルロースナノファイバー化用パルプ繊維濾液を得る。

[0119] <分析>

(9) ホールピペットを用いて、リグニン濾液 5 mL を 50 mL メスフラスコに加え、脱イオン水で定容化する（リグニン 10,000 ppm）。

(10) メスピペットを用いて、定容化したリグニン濾液を、4 つの 100 mL メスフラスコに、1 mL, 2 mL, 5 mL 及び 10 mL 加え、脱イオン水を加えて定容化し、検量液（100 ppm, 200 ppm, 500 ppm, 1,000 ppm）を形成する。

(11) 脱イオン水をブランクとし、検量液の透過率を波長 530 nm で測定し、235 ページの吸光度換算表を参考に吸光度に換算する。

(12) 検量液濃度と、吸光度との検量線を作成する。

(13) セルロースナノファイバー化用パルプ繊維濾液の透過率を、脱イオン水をブランクとして測定し、235 ページの吸光度換算表を参考に吸光度に換算し、検量線から、リグニン濃度を算出する。

(14) リグニン濃度から、リグニン含有率（質量％）を算出する。

なお、上述の市販のリグニン（95％）は、リグニン濃度等の市販のリグニン（例えば、ナカライテスク社のリグニン）に変更してもよい。

[0120] 本開示の製造方法では、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、好ましくは 300 mL 以上、より好ましくは 320 mL 以上、さらに好ましく

は340 mL以上、そしてさらにいっそう好ましくは360 mL以上の叩解度低下速度を有する。そうすることにより、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、続くセルロースナノファイバー形成ステップにおいて、毛羽立ちやすく、セルロースナノファイバー化されやすくなる。

[0121] 本開示の製造方法では、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、好ましくは990 mL以下、より好ましくは800 mL以下、さらに好ましくは700 mL以下、そしてさらにいっそう好ましくは600 mL以下の叩解度低下速度を有する。そうすることにより、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維、並びに製造されるセルロースナノファイバーが損傷することを抑制することができる。

なお、上記叩解度低下速度は、本開示の製造方法が、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維のリグニン含有率の低さ、リグニン含有率の分布の狭さ等を達成することにより得られるものである。

[0122] 上記叩解度低下速度は、以下の叩解度低下試験に従って測定される。

<叩解度低下試験>

(1) セルロースナノファイバー化用パルプ繊維を、JIS P 8221-1:1998のパルプー叩解方法―第1部:ビーター法に従って、1時間以上、好ましくは2時間叩解する。

(2) 叩解開始後、20分毎にサンプルを採取し、JIS P 8121-2:2012のパルプーろ水度試験方法―第2部:カナダ標準ろ水度法に従って、各サンプルの叩解度(カナダ標準ろ水度, Canadian Standard freeness)を測定する。なお、サンプルの叩解度が100 mLを切った時点で試験をやめてもよい。

(3) 横軸に時間(h)、縦軸に叩解度(mL)をプロットし、最小二乗法で一次関数に近似し、その傾きの絶対値を、叩解度低下速度(mL/m)として採用する。

なお、叩解度低下速度は、その値が大きいほど、単位時間当たりの叩解度の低下が速い、すなわち、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、叩

解されやすい（毛羽立ちやすい）ことを意味する。

[0123] 本開示では、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維は、好ましくは 20° 以下の水接触角を有し、より好ましくは 15° 以下、そしてさらに好ましくは 10° 以下の水接触角を有する。そうすることにより、上記製造方法により製造されるセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を、乾燥させて保管した後、セルロースナノファイバー化に当たり、水溶液に簡易に分散させることができる。なお、上記観点からは、上記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維の水接触角は、 0° であってもよい。

[0124] セルロースナノファイバー化用パルプ繊維の水接触角は、以下の通り測定することができる。

（１）温度： $20 \pm 5^{\circ}\text{C}$ 及び湿度： $65 \pm 5\% \text{RH}$ の恒温恒湿室に、アルミ製リング（外径： 43 mm ，内径： 40 mm ，高さ： 5 mm ）と、 120°C で 60 分乾燥した糖化用パルプ繊維とを準備し、 24 時間静置する。

（２）セルロースナノファイバー化用パルプ繊維 1.5 g を、アルミ製リング内に均等に充填し、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維を、アルミ製リングごと、底面の平滑なプレス機を用いて、 3 Mpa の圧力で 1 分間圧縮し、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維の表面を平滑化する。

（３）圧縮されたセルロースナノファイバー化用パルプ繊維の水接触角を、JIS R 3257：1999の「基板ガラス表面のぬれ性試験方法」の6．静滴法に準拠して測定する。接触角測定装置としては、協和界面科学株式会社製自動接触角計CA-V型が挙げられる。上記水接触角は、脱イオン水を滴下後、 200 ms 後の値を意味する。

（４）異なる 20 のサンプルにおいて水接触角を測定し、それらの平均値を採用する。

[0125] 本開示では、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、好ましくは 0.65 質量%以下、より好ましくは 0.50 質量%以下、さらに好ましくは 0.30 質量%、そしてさらにいっそう好ましくは 0.20 質量%以下の灰分率を有する。そうすることにより、セルロースナノファイバー化用パルプ

繊維から、セルロースナノファイバーを製造する際に、金属イオン及びその析出物が、セルロースナノファイバー形成工程に用いられる設備を痛めにくく、そしてセルロースナノファイバー化用パルプ繊維の微細化を阻害しにくくなる。

上記灰分率は、高吸収性ポリマーを不活化する不活化工程 S 3 1 において、不活化剤として排泄物に含まれる金属イオンと錯体を形成可能な酸、特にクエン酸を選択することにより下げることができる。

[0126] 本明細書では、灰分は、有機質が灰化されてあとに残った無機質又は不燃性残留物の量を意味し、灰分率は、促成すべき資料に含まれる灰分の比率（質量比）を意味する。上記灰分率は、生理処理用品材料規格の「2. 一般試験法」の「5. 灰分試験法」に従って測定する。具体的には、灰分率は、以下の通り測定される。

（１）あらかじめ白金製、石英製又は磁製のるつぼを、500～550℃で1時間強熱し、放冷後、その質量を精密に量る。

（２）120℃で60分乾燥したセルロースナノファイバー化用パルプ繊維2～4gを採取し、るつぼに入れ、その質量を精密に量り、必要ならばるつぼのふたをとるか、またはずらし、初めは弱く加熱し、徐々に温度を上げて500～550℃で4時間以上強熱して、炭化物が残らなくなるまで灰化する。

（３）放冷後、その質量を精密に量る。再び残留物を恒量になるまで灰化し、放冷後、その質量を精密に量り、灰分率（質量％）とする。

[0127] 本実施の形態では、好ましい態様として、オゾン処理工程 S 3 6（連続処理工程）の前に、高吸収性ポリマーの吸水性能を不活化可能な水溶液を用いて混合物を処理して、混合物中の高吸収性ポリマーの吸水性能を不活化する不活化工程 S 3 1 と、オゾン処理工程 S 3 6（連続処理工程）の前に、不活化された高吸収性ポリマーと、パルプ繊維とを水溶液から分離する第1の分離工程 S 3 2 とをさらに備える。このように、本方法では、好ましい態様として、不活化工程 S 3 1 において、高吸収性ポリマーの吸水性能を不活化可

能な水溶液で、高吸収性ポリマーの吸水性能を抑制するので、後工程のオゾン処理工程 S 3 6（連続処理工程）の段階で、より容易に、高吸収性ポリマーを処理液 5 2 により短時間で溶解できる。

[0128] 本実施の形態では、好ましい態様として、不活化工程 S 3 1 において、高吸収性ポリマーの吸水性能を不活化可能な水溶液は、酸性水溶液であり、例えば、pH 2.5 以下の酸性水溶液である。このように、本方法では、好ましい態様として、高吸収性ポリマーの吸水性能を不活化可能な水溶液が酸性水溶液なので、高吸収性ポリマーがより不活化され易く、それにより不活化工程 S 3 1 の段階で、高吸収性ポリマーの吸水性能をより確実に抑制することができる。それにより、後工程のオゾン処理工程 S 3 6（連続処理工程）の段階で、より容易に、高吸収性ポリマーを処理液により短時間溶解できる。

[0129] また、他の好ましい実施の形態として、処理槽 3 1 は、少なくとも互いに直列に連結された第 1 の処理槽 3 1 - 1 と第 2 の処理槽 3 1 - 2 とを含んでもよい。図 4 は、図 1 のオゾン処理工程の装置 2 の他の構成例を示す概略図である。図 4 の装置 2 は、図 2 の装置 2 と比較して、オゾン処理部 4 が 2 個直列に接合されている点、言い換えると、第 1 の処理槽 3 1 - 1 と第 2 の処理槽 3 1 - 2 とが直列に接合されている点で相違する。その場合、例えば、第 1 の処理槽 3 1 - 1 は混合液 5 1 を供給され、第 1 の処理済み液（第 1 の処理槽 3 1 - 1 の処理液 5 2 - 1）を排出し、第 2 の処理槽 3 1 - 2 は、第 1 の処理済み液を供給され、第 2 の処理済み液（第 2 の処理槽 3 1 - 2 の処理液 5 2 - 2）を排出する、というように混合液 5 1 が多段階に処理される。その場合、容量の大きな処理槽 3 1 を一個備える場合と比較して、第 1、第 2 の処理槽 3 1 - 1、3 1 - 2 ごとに新しい処理液 5 2 - 1、5 2 - 2 で処理が行われるので、例えば、第 1 の処理槽（初段の処理槽）3 1 - 1 において溶解し切れなかった高吸収性ポリマーを、第 2 の処理槽（次段の処理槽）3 1 - 2 において容易に溶解できる等、高吸収性ポリマーをより確実に溶解できて、繊維から除去できる。

[0130] 本実施の形態では好ましい形態として、さらに材料分離工程 S 1 において、前処理工程 S 1 1 にて、使用済の衛生用品を、破断等せずにそのままの形状で、かつ高吸収性ポリマーの不活化もせずに水で非常に膨張した状態にできる。それにより、使用済の衛生用品内に非常に高い内圧を生じさせ、その表面のいずれかの箇所がはち切れそうな状態にすることができる。そして、分解工程 S 1 2 にて、このような状態の使用済の衛生用品に、物理的な衝撃を加えることで、その表面のいずれかの箇所を裂けさせて、内部の吸収コアを外部へ噴出させることができる。それにより、使用済の衛生用品を、少なくともフィルム（裏面シート）と、吸収コアとに分解できる。このとき、フィルムは概ね元の形状を維持しているので、その後の分離工程 S 1 3 において、吸収コアから容易に分離できる。それにより、フィルムのような構成部材を、破断等せずにそのままの形状を維持したまま、他の構成部材から分離できる。従って、衛生用品のフィルムのような構成部材を効率よく回収できる。

[0131] 本実施の形態では好ましい形態として、接着剤の除去にテルペンを用いることで、衛生用品の構成部材を接着するホットメルト接着剤を常温で溶解可能となる。それにより、衛生用品を簡単かつ綺麗にばらけ易くでき、衛生用品から、パルプ繊維及び高吸収性ポリマーを分離し、不織布及びフィルムを、それぞれ別々に部材形態を残したまま分離できる。すなわち、衛生用品を破碎したり、複雑な分離工程を経由したりしなくても容易にパルプ繊維、フィルム、不織布を別々に回収できる。テルペンとしてリモネンを用いた場合、リモネンの副次効果として、柑橘系の爽やかな臭気があるため、排泄物由来の臭気がある程度覆い隠し、作業者の臭気負担、近隣への臭気影響等を低減できる。リモネンは、モノテルペンでスチレンと構造が似ているため、衛生用品に一般的に使用されているスチレン系のホットメルト接着剤を溶解できる。常温で衛生用品の洗浄処理が可能なため、エネルギーコストを低減でき、臭気の発生拡散を抑制できる。テルペンは油汚れ洗浄効果が高く、ホットメルト接着剤の溶解効果以外にも、フィルムに印刷がある場合、その印刷

インクも分解除去可能であり、印刷されたフィルムも純度の高いプラスチック素材として回収可能である。

[0132] また、高吸収性ポリマーの不活化に pH 2.5 以下の有機酸水溶液を用いたときは、パルプ繊維を劣化させ難い。また、有機酸としてクエン酸を用いたときは、クエン酸のキレート効果と洗浄力により、排泄物由来の汚れ成分除去効果が期待できる。また、除菌効果とアルカリ性臭気に対する消臭効果も期待できる。

[0133] さらに、高吸収性ポリマーをオゾンで酸化分解することにより、パルプ繊維へのコンタミ、高吸収性ポリマー吸水による汚水の急激な増加等を防止することが可能である。オゾンの濃度を調整することにより、高吸収性ポリマーの酸化分解と殺菌を同時に行うことが可能である。また、オゾンを使用した場合、塩素系薬剤を一切使用しないため、回収されたプラスチックの部材から、燃焼炉を痛め難い高品質の RPF の製造も可能である。処理工程中に塩類を使用していないため、パルプ繊維への残存が無く、低灰分で高品質のセルロースナノファイバー化用パルプ繊維が回収可能である。

[0134] 本開示の製造方法は、処理液排出ステップの後に、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維をセルロースナノファイバー化する、セルロースナノファイバー形成ステップをさらに含むことができる。上記セルロースナノファイバー形成ステップとしては、特に制限されず、当技術分野で公知のセルロースナノファイバー化方法が含まれる。上記セルロースナノファイバー化方法としては、例えば、特開 2010-235681 号公報、特開 2010-254726 号公報等に記載の方法が挙げられる。

[0135] 上記セルロースナノファイバー形成ステップは、図 1 に示されるように、第 2 の乾燥工程 S38 において得られた、乾燥したセルロースナノファイバー化用パルプ繊維をセルロースナノファイバー形成ステップに供することができ、あるいは第 4 の分離工程 S37 において得られた、未乾燥のセルロースナノファイバー化用パルプ繊維をセルロースナノファイバー形成ステップに供してもよく、あるいはオゾン処理工程 S36 において得られた、セルロ

ースナノファイバー化用パルプ繊維を含む処理液52をセルロースナノファイバー形成ステップに供することができる。

実施例

[0136] 介護施設から回収した、使用済の複数種の使い捨ておむつから、図1及び図2に示される方法に従って、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維を製造した。オゾン処理工程S36に関連する条件は、以下の通りであった。

(i) 混合液51

- ・濃度：1質量％（パルプ繊維及び高吸収性ポリマーの濃度）
- ・pH：2.4

(ii) 処理槽31

- ・容量：60L
- ・高さ：2.6m
- ・第1の流量：2L／分
- ・第2の流量：2L／分
- ・槽内処理時間：30分
- ・ V/W ：100
- ・ R_0/V ：0.033

(iii) オゾン含有ガス

- ・オゾン濃度：100g／m³
- ・形態：ナノバブル

[0137] [製造例1]

不活化工程S31を、pH2.0のクエン酸で行い、上述の条件でオゾン処理工程S36を行い、得られたセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を120℃で60分乾燥し、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維No.1を得た。

[製造例2]

不活化工程S31を、消石灰で行った以外は、製造例1と同様にして、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維No.2を得た。

[0138] [比較製造例 1]

オゾン処理工程 S 3 6 において、オゾン含有ガスを送出しなかった以外は製造例 1 と同様にして、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維 No. 3 を得た。

[比較製造例 2]

オゾン処理工程 S 3 6 において、オゾン含有ガスを送出しなかった以外は製造例 2 と同様にして、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維 No. 4 を得た。

[比較製造例 3]

N B K P のバージンパルプ繊維を、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維 No. 5 とした。

[0139] [実施例 1 及び 2, 並びに比較例 1 ~ 3]

セルロースナノファイバー化用パルプ繊維 No. 1 ~ No. 5 のリグニン含有率 (質量%)、水接触角 (°) 及び灰分率 (質量%) を、本明細書に記載の方法に従って測定した。結果を表 1 に示す。また、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維 No. 1, No. 2 及び No. 5 の叩解度低下速度 (mL/h) と、当該叩解度低下試験において所定時間叩解した後の叩解度 (mL) とを、本明細書に記載される叩解度低下試験に従って測定した。結果を、合わせて表 1 に示す。

[0140] [表 1]

表 1

例No.	実施例1	実施例2	比較例1	比較例2	比較例3
セルロースナノファイバー化用パルプ繊維No.	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4	No. 5
不活化	酸	消石灰	酸	消石灰	-
オゾン処理	有り	有り	無し	無し	-
リグニン含有率(質量%)	<0.10	<0.10	0.10	0.15	0.16
水接触角(°)	0	0	83.1	— ^{a)}	13.9
灰分率(質量%)	0.09	0.15	0.16	16	0.12
叩解度低下速度(mL/h)	485	360	-	-	275
叩解度(mL)/時間(分)	88/80	138/120	-	-	270/120

a) 異物多く、測定不可

符号の説明

[0141]	3 1	処理槽
	3 2	混合液供給口
	3 3	処理液排出口
	4 3	オゾン含有ガス供給口
	5 1	混合液
	5 2	処理液
	5 3	オゾン含有ガス
	S 3 6	オゾン処理工程

請求の範囲

- [請求項1] 使用済の衛生用品のパルプ繊維からセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を製造する方法であって、次の各ステップ、
- 混合液供給口と、前記混合液供給口よりも下方に配置された処理液排出口及びオゾン含有ガス供給口とを備える処理槽を準備する、準備ステップ、
- 使用済の衛生用品由来の高吸収性ポリマー及びパルプ繊維と、水とを含む混合液を、前記混合液供給口から前記処理槽に供給する、混合液供給ステップ、
- オゾン含有ガスを、前記オゾン含有ガス供給口から前記処理槽内の処理液に供給する、オゾン含有ガス供給ステップ、
- 前記処理槽内で、前記高吸収性ポリマー及びパルプ繊維を下降させながら、前記オゾン含有ガスを上昇させることにより、前記オゾン含有ガスを、前記高吸収性ポリマー及びパルプ繊維と接触させ、前記高吸収性ポリマーの少なくとも一部を前記処理液に溶解させるとともに、前記パルプ繊維からセルロースナノファイバー化用パルプ繊維を形成する、セルロースナノファイバー化用パルプ繊維形成ステップ、
- 前記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維を含む前記処理液を、前記処理液排出口から排出する、処理液排出ステップ、
- を含み、
- 前記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、0.1質量%以下のリグニン含有率を有する、
- ことを特徴とする、前記方法。
- [請求項2] 前記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、300 mL/h以上の叩解度低下速度を有する、請求項1に記載の方法。
- [請求項3] 前記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維形成ステップにおいて、前記オゾン含有ガスを、マイクロバブル又はナノバブルとして、前記オゾン含有ガス供給口から供給する、請求項1又は2に記載の方

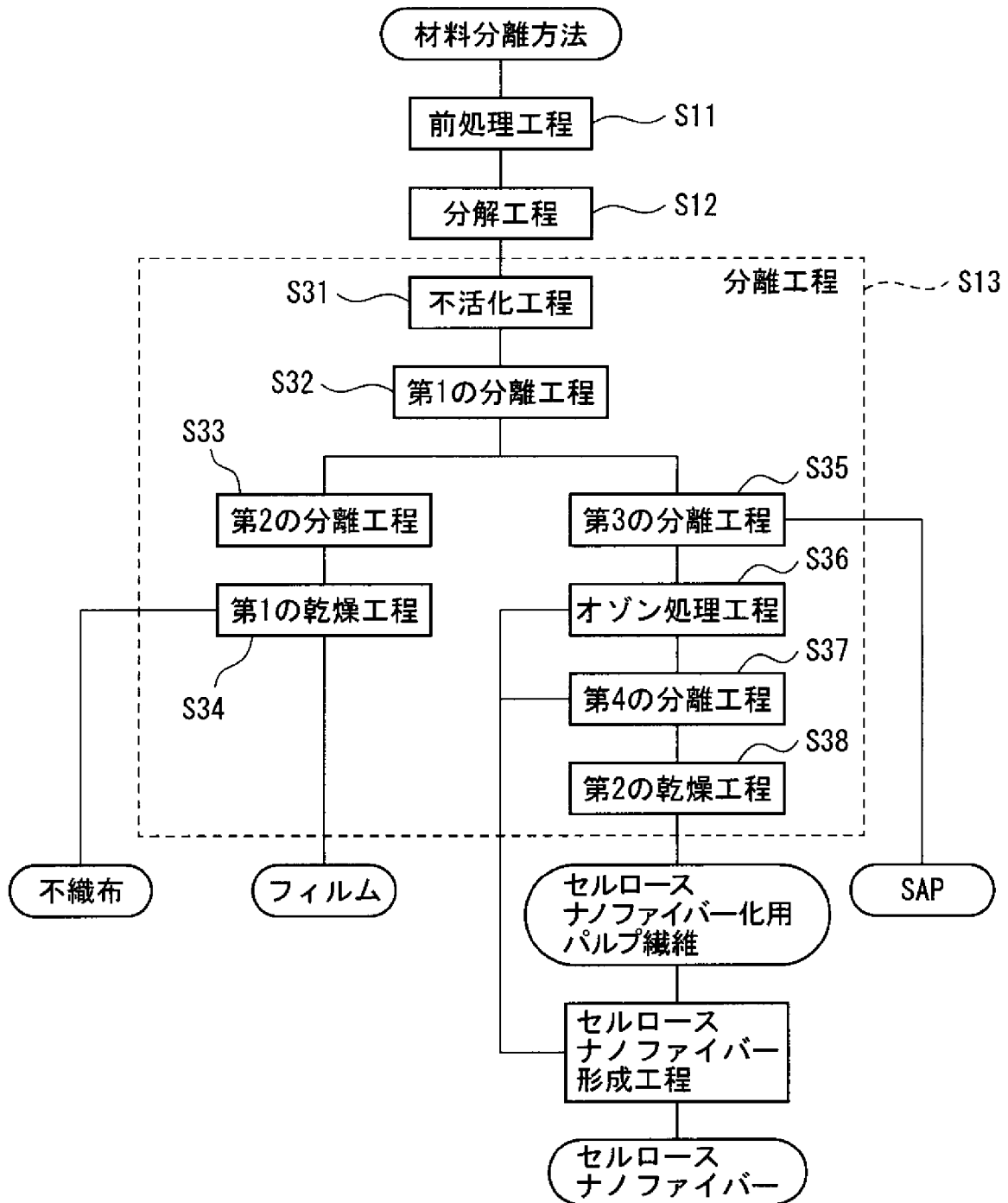
法。

- [請求項4] 前記処理液が酸性である、請求項1～3のいずれか一項に記載の方法。
- [請求項5] 前記混合液供給ステップの前に、前記高吸収性ポリマーを酸で不活化する不活化ステップをさらに含む、請求項1～4のいずれか一項に記載の方法。
- [請求項6] 前記酸が、排泄物に含まれる金属イオンと錯体を形成可能な酸である、請求項5に記載の方法。
- [請求項7] 前記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、0.65質量%以下の灰分率を有する、請求項1～6のいずれか一項に記載の方法。
- [請求項8] 前記混合液供給ステップにおいて、前記混合液を、前記混合液供給口から前記処理槽に第1の流量で連続的に供給し、前記処理液排出ステップにおいて、前記処理液を、前記処理液排出口から第2の流量で連続的に排出する、請求項1～7のいずれか一項に記載の方法。
- [請求項9] 前記処理液排出ステップの後に、前記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維からセルロースナノファイバーを形成する、セルロースナノファイバー形成ステップをさらに含む、請求項1～8のいずれか一項に記載の方法。
- [請求項10] パルプ繊維及び高吸収性ポリマーを含む使用済の衛生用品由来のセルロースナノファイバー化用パルプ繊維であって、
前記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、0.1質量%以下のリグニン含有率を有する、
ことを特徴とする、前記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維。
- [請求項11] 前記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、300 mL/h以上の叩解度低下速度を有する、請求項10に記載のセルロースナノファイバー化用パルプ繊維。
- [請求項12] 前記セルロースナノファイバー化用パルプ繊維が、0.65質量%

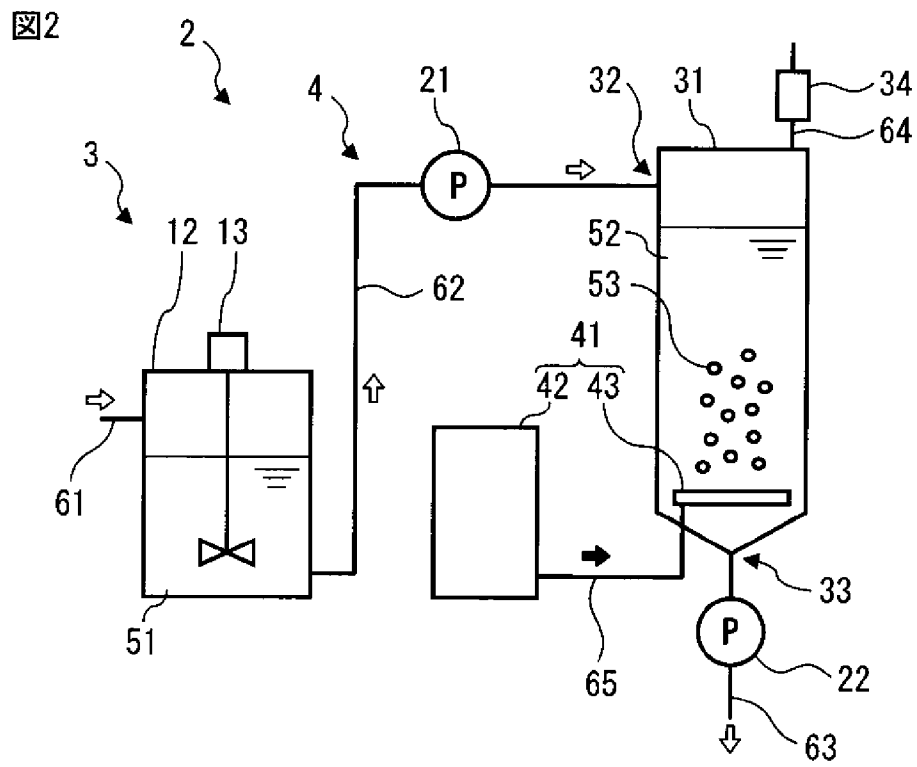
以下の灰分率を有する、請求項 10 又は 11 のいずれかに記載のセル
ロースナノファイバー化用パルプ繊維。

[図1]

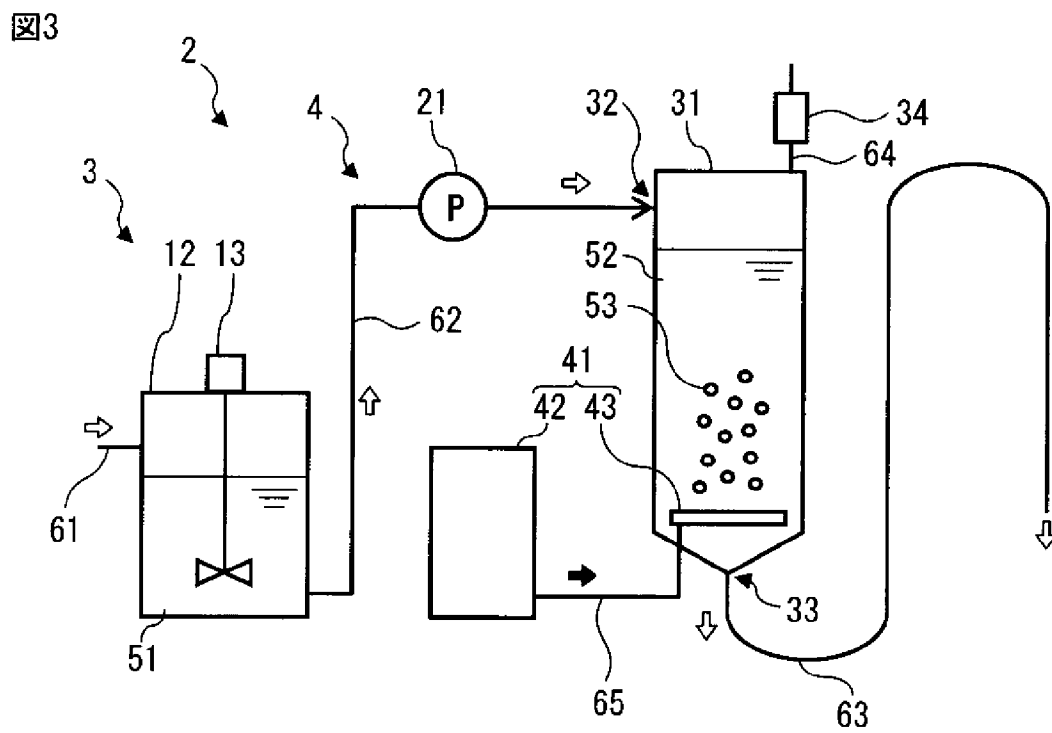
図1



[図2]

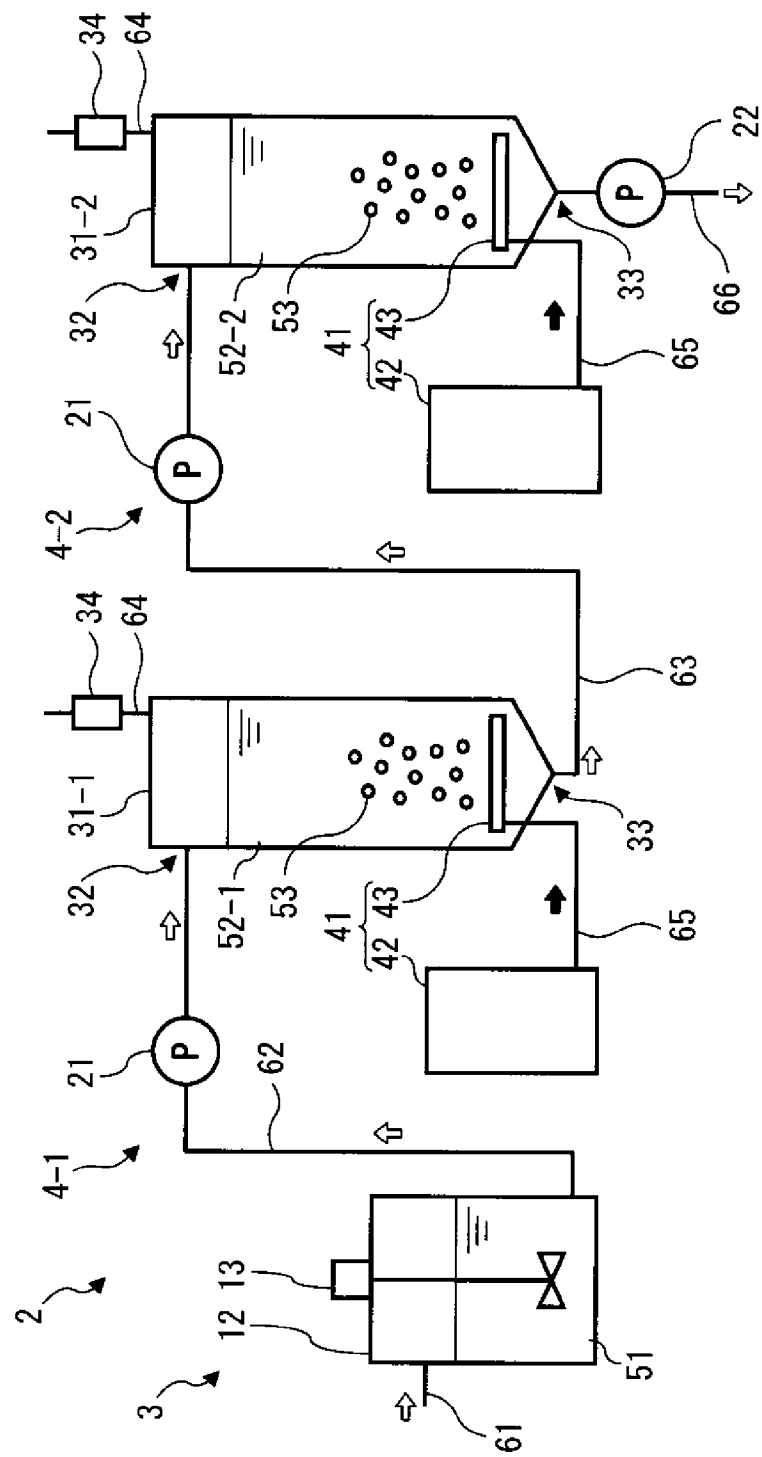


[図3]



[図4]

図4



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/018175

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. D21C5/02 (2006.01) i, A61L2/18 (2006.01) i, A61L11/00 (2006.01) i,
B09B3/00 (2006.01) i, B09B5/00 (2006.01) i, B29B17/00 (2006.01) i,
C08J11/10 (2006.01) i, C08J11/16 (2006.01) i, C08J11/26 (2006.01) i,
A61L101/10 (2006.01) n

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl. B09B1/00-5/00, B09C1/00-1/10, B29B17/00-17/04, C08J11/00-11/28,
D21B1/00-1/38, D21C1/00-11/14, D21D1/00-99/00, D21F1/00-13/12,
D21G1/00-9/00, D21H11/00-27/42, D21J1/00-7/00

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

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2018
Registered utility model specifications of Japan 1996-2018
Published registered utility model applications of Japan 1994-2018

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

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2015/190140 A1 (UNI-CHARM CORP.) 17 December 2015 & US 2017/0107667 A1 & CN 106460327 A	1-12
A	JP 2017-100133 A (UNI-CHARM CORP.) 08 June 2017 & WO 2014/168179 A1	1-12
A	JP 2000-084533 A (CHO, Takeshi) 28 March 2000 (Family: none)	1-12

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
03 August 2018 (03.08.2018)

Date of mailing of the international search report
14 August 2018 (14.08.2018)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. D21C5/02(2006.01)i, A61L2/18(2006.01)i, A61L11/00(2006.01)i, B09B3/00(2006.01)i, B09B5/00(2006.01)i, B29B17/00(2006.01)i, C08J11/10(2006.01)i, C08J11/16(2006.01)i, C08J11/26(2006.01)i, A61L101/10(2006.01)n

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. B09B1/00-5/00, B09C1/00-1/10, B29B17/00-17/04, C08J11/00-11/28, D21B1/00-1/38, D21C1/00-11/14, D21D1/00-99/00, D21F1/00-13/12, D21G1/00-9/00, D21H11/00-27/42, D21J1/00-7/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 8 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 8 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 8 年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	WO 2015/190140 A1 (ユニ・チャーム株式会社) 2015.12.17, & US 2017/0107667 A1 & CN 106460327 A	1 - 1 2
A	JP 2017-100133 A (ユニ・チャーム株式会社) 2017.06.08, & WO 2014/168179 A1	1 - 1 2
A	JP 2000-084533 A (長 武志) 2000.03.28, (ファミリーなし)	1 - 1 2

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー	の日の後に公表された文献
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)	「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日 0 3 . 0 8 . 2 0 1 8	国際調査報告の発送日 1 4 . 0 8 . 2 0 1 8
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 長谷川 大輔 電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 7 4