

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4713397号
(P4713397)

(45) 発行日 平成23年6月29日 (2011. 6. 29)

(24) 登録日 平成23年4月1日 (2011. 4. 1)

(51) Int. Cl.

F I

B O 1 J 19/00 (2006. 01)

B 8 1 B 1/00 (2006. 01)

B O 1 J 2/06 (2006. 01)

B O 1 J 13/04 (2006. 01)

B O 1 J 19/00 3 2 1

B 8 1 B 1/00

B O 1 J 2/06

B O 1 J 13/02 A

請求項の数 10 (全 23 頁)

(21) 出願番号 特願2006-134231 (P2006-134231)
 (22) 出願日 平成18年5月12日 (2006. 5. 12)
 (65) 公開番号 特開2007-216206 (P2007-216206A)
 (43) 公開日 平成19年8月30日 (2007. 8. 30)
 審査請求日 平成21年3月18日 (2009. 3. 18)
 (31) 優先権主張番号 特願2006-10255 (P2006-10255)
 (32) 優先日 平成18年1月18日 (2006. 1. 18)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(73) 特許権者 000006747
 株式会社リコー
 東京都大田区中馬込 1 丁目 3 番 6 号
 (74) 代理人 100090103
 弁理士 本多 章悟
 (74) 代理人 100067873
 弁理士 樺山 亨
 (72) 発明者 升澤 正弘
 東京都大田区中馬込 1 丁目 3 番 6 号・株式
 会社リコー内
 (72) 発明者 法兼 義浩
 東京都大田区中馬込 1 丁目 3 番 6 号・株式
 会社リコー内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 微小流路構造体及び微小液滴生成システム

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

微小液滴を生成する微小流路構造体において、

液滴化される分散相の流体と、該分散相の流体とは相溶性が無く液滴を分散させる媒体としての連続相の流体とをそれぞれ個別に導入する流体導入流路と、これらの流体が合流する合流流路と、該合流流路からの流体の排出を可能とする共通出口部とを有し、

前記合流流路には、流体間の界面に擾乱を誘起し、前記分散相の流体を液滴化するために、流路断面積が流体進行方向に周期的に変化する凹凸の周期構造を有する領域が存在し、

前記領域には、凹凸の繰り返し回数が 10 回以上となるように、凸構造又は凹構造が流体進行方向に等間隔に複数形成され、

前記流体導入流路における前記分散相の流体を導入する流路の出口形状が、前記流体導入流路における複数の流路の配置方向を幅方向、該幅方向に対し垂直な方向を深さ方向とした場合、「深さ方向長さ / 幅方向長さ」の値が 1 より大きい断面形状を有することを特徴とする微小流路構造体。

【請求項 2】

請求項 1 に記載の微小流路構造体において、

前記合流流路の流路断面積が流体進行方向に周期的に変化する領域は、前記深さ方向あるいは前記幅方向のいずれかひとつの方向の長さが異なるものであることを特徴とする微小流路構造体。

10

20

【請求項 3】

請求項 1 又は 2 に記載の微小流路構造体において、
前記流体導入流路が、流体の進行方向と直交する方向に流体の種類毎に交互に複数並列配置されていることを特徴とする微小流路構造体。

【請求項 4】

請求項 3 に記載の微小流路構造体において、
前記合流流路の壁面に接する端部の流体は連続相であることを特徴とする微小流路構造体。

【請求項 5】

請求項 1 乃至 4 のうちのいずれか 1 つに記載の微小流路構造体において、
前記凹凸の周期構造が、矩形波もしくは矩形波状の形状を有していることを特徴とする微小流路構造体。

10

【請求項 6】

請求項 1 乃至 4 のうちのいずれか 1 つに記載の微小流路構造体において、
前記凹凸の周期構造が、異なる矩形波もしくは矩形波状の形状を組み合わせた形状を有していることを特徴とする微小流路構造体。

【請求項 7】

請求項 1 乃至 4 のうちのいずれか 1 つに記載の微小流路構造体において、
前記合流流路の壁面の硬度が流体の進行方向に間隔をおいて異なり、硬度の低い部分が流体の圧力で凹むことにより前記凹凸の周期構造が発現することを特徴とする微小流路構造体。

20

【請求項 8】

請求項 1 乃至 7 のうちのいずれか 1 つに記載の微小流路構造体において、
前記領域の周期波長が、液滴化される流体の合流直前における円相当直径の $3.0 \sim 10.0$ 倍であることを特徴とする微小流路構造体。

【請求項 9】

請求項 1 乃至 8 のうちのいずれか 1 つに記載の微小流路構造体を有する微小液滴生成システム。

【請求項 10】

請求項 9 に記載の微小液滴生成システムにおいて、
前記微小流路構造体により生成された液滴の表面に膜を形成するための手段を有していることを特徴とする微小液滴生成システム。

30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、一般的にマイクロリアクタ、マイクロ化学プロセスと総称される、数マイクロメートルから数ミリメートルの流路構造体を用いて流体を操作し、化学工学単位操作又は分析を短時間に安定的に実現する技術に関し、具体的には、微小流路構造体及び微小液滴生成システムに関する。

本発明は、画像表示素子（重合トナー、電気泳動型ペーパーライクディスプレイ用途のマイクロカプセル）、ドラッグデリバリー用途のエマルション、塗料、化粧品、その他エマルション、感光材料などに利用される微粒子や微粒子分散体及びその製造方法に応用することができる。

40

【背景技術】

【0002】

エマルション及びエマルションにおける分散相を固化して得られる微粒子又は液滴表面を固化して得られるカプセル微粒子は産業上様々な用途に用いられている。

現在、乳化分散体の工業的生産には以下の手法が用いられている。

（１）ホモジナイザーによる乳化（特許文献 1 等）

（２）超音波乳化（特許文献 2 等）

50

これらの技術は、連続相に、分散相として、微粒子化して分散させたい物質を投入し、機械的作用を与えることでせん断力を繰り返し与え、乳化分散体を得るのであるが、分散相に与えられるせん断力が、乳化位置によって不均一であるために、多分散な微粒子が生成する。

これに対し、

(3) 多孔質ガラス膜を用いた乳化(特許文献3等)は、分散相と連続相を多孔質ガラス膜により仕切り、分散相を連続相側へ押し出すことにより分散相が膜を通過し、連続相に接触し表面張力がせん断力となり最終的に分散相が微粒子化し、乳化分散体を得る方法である。

ところが、生成される微粒子の粒子径は孔径の不均一さに依存し、多分散な微粒子が生成する。

【0003】

高度な単分散性を有する乳化分散体や微粒子を製造する方法としては、

(4) マイクロチャネル乳化(特許文献4等)が挙げられる。分散相と連続相を区切る膜を人工的に一様な構造とし、(微粒子の直径の標準偏差/微粒子の平均直径)が0.03以下の非常に単分散性の高い微粒子が得られるが、所望の大きさの粒子に対して各チャネルの大きさが小さいために含微粒子液体を分散相に用いた場合目詰まりの問題があると考えられる。

(5) 特許文献5には、Y字型のマイクロチャネルを複数用い、単分散マイクロ液滴の生成を行う方法が開示されている。しかし、多数の流路を形成し、同じ流量の流体を全てに導入することは困難である。また、1チャネルから単位時間あたりに発生する液滴の数は数千個程度であり、収量性が低い。

特許文献6には、膜乳化法によるトナーの製造方法が開示されている。

【0004】

【特許文献1】特許第3476223号公報

【特許文献2】特許第3218445号公報

【特許文献3】特許第2733729号公報

【特許文献4】特開2000-273188号公報

【特許文献5】特開2004-358386号公報

【特許文献6】特開平7-120974号公報

【特許文献7】特許第3511238号公報

【特許文献8】特許第3635575号公報

【特許文献9】特開2004-243308号公報

【特許文献10】特開2004-197083号公報

【特許文献11】特開2005-185877号公報

【特許文献12】特開2005-213334号公報

【特許文献13】特開2005-238118号公報

【特許文献14】特開2004-098225号公報

【非特許文献1】Rayleigh, Lord "On the Instability of Jets" Proc. London Math. Soc. 110: 4 [1878]

【非特許文献2】Schneider J. M., C. D. Hendricks, Rev. Instrum. 35 (10), 1349-50 [1964]

【非特許文献3】Lindblad N. R. and J. M. Schneider, J. Sci. Instrum. 42, 635 [1965]

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明は、簡単な構成のマイクロチャネルを用いた方式において、単分散性の高い微小液滴を生成できるとともに、生産量を大幅に向上できる微小流路構造体の提供を、その主

10

20

30

40

50

な目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0006】

上記目的を達成するために、請求項1記載の発明では、微小液滴を生成する微小流路構造体において、液滴化される分散相の流体と、該分散相の流体とは相溶性が無く液滴を分散させる媒体としての連続相の流体とをそれぞれ個別に導入する流体導入流路と、これらの流体が合流する合流流路と、該合流流路からの流体の排出を可能とする共通出口部とを有し、前記合流流路には、流体間の界面に擾乱を誘起し、前記分散相の流体を液滴化するために、流路断面積が流体進行方向に周期的に変化する凹凸の周期構造を有する領域が存在し、前記領域には、凹凸の繰り返し回数が10回以上となるように、凸構造又は凹構造が流体進行方向に等間隔に複数形成され、前記流体導入流路における前記分散相の流体を導入する流路の出口形状が、前記流体導入流路における複数の流路の配置方向を幅方向、該幅方向に対し垂直な方向を深さ方向とした場合、「深さ方向長さ/幅方向長さ」の値が1より大きい断面形状を有することを特徴とする。

10

【0007】

請求項2に記載の発明では、請求項1に記載の微小流路構造体において、前記合流流路の流路断面積が流体進行方向に周期的に変化する領域は、前記深さ方向あるいは前記幅方向のいずれかひとつの方向の長さが異なるものであることを特徴とする。

請求項3に記載の発明では、請求項1又は2に記載の微小流路構造体において、前記流体導入流路が、流体の進行方向と直交する方向に流体の種類毎に交互に複数並列配置されていることを特徴とする。

20

請求項4に記載の発明では、請求項3に記載の微小流路構造体において、前記合流流路の壁面に接する端部の流体は連続相であることを特徴とする。

請求項5に記載の発明では、請求項1乃至4のうちのいずれか1つに記載の微小流路構造体において、前記凹凸の周期構造が、矩形波もしくは矩形波状の形状を有していることを特徴とする。

請求項6に記載の発明では、請求項1乃至4のうちのいずれか1つに記載の微小流路構造体において、前記凹凸の周期構造が、異なる矩形波もしくは矩形波状の形状を組み合わせた形状を有していることを特徴とする。

【0008】

30

請求項7に記載の発明では、請求項1乃至4のうちのいずれか1つに記載の微小流路構造体において、前記合流流路の壁面の硬度が流体の進行方向に間隔をおいて異なり、硬度の低い部分が流体の圧力で凹むことにより前記凹凸の周期構造が発現することを特徴とする。

請求項8に記載の発明では、請求項1乃至7のうちのいずれか1つに記載の微小流路構造体において、前記領域の周期波長が、液滴化される流体の合流直前における円相当直径の3.0～10.0倍であることを特徴とする。

請求項9に記載の発明では、微小液滴生成システムにおいて、請求項1乃至8のうちのいずれか1つに記載の微小流路構造体を有することを特徴とする。

請求項10に記載の発明では、請求項9に記載の微小液滴生成システムにおいて、前記微小流路構造体により生成された液滴の表面に膜を形成するための手段を有していることを特徴とする。

40

【発明の効果】

【0011】

本発明によれば、流体の通過する断面積を変化させ、速度分布に擾乱を与えることができ、これにより圧電素子などによる機械的振動を与えることなく、簡単な構成で一方の流体の液滴化を誘起させることが可能となる。従って本発明の微小流路を用いることにより、より径の揃った液滴を供給することができる。

相溶性の無い2流体を交互に導入する流路を設け、合流させ、合流後流路に共通の断面積変化構造を設けることで、全ての流体に等しく擾乱を与えることが可能となる。これに

50

より、全ての流路から単分散液滴を安定的に供給できる。

更に、流路断面積を周期的に変化させることによって流体に周期的に速度変動を生じ、より擾乱を安定的に誘起することができる。従って、従来技術のマイクロチャネル法による乳化法に較べてより安定的に、高速周期にて液滴を連続的に供給することが可能となる。

【 0 0 1 2 】

更に、周期構造が矩形波もしくは矩形波状の形状であることにより、流体の速度変動が急峻に変化することが可能となり、より安定的に液滴を連続的に供給することが可能となる。また、ウェットエッチング法等の微細形状形成手段により、矩形または矩形状は加工が容易である。

10

また、液物性及び速度条件によっては、サテライトと呼ばれる極微小粒子が生成する条件が見受けられるが、周期的凹凸構造が任意の矩形形状の組み合わせであることにより、サテライト発生を抑制することが可能となる。

複数の流体をそれぞれ導入口より交互に導入し、合流する部分において、合流流路壁に接する端部の流体が連続相であることにより、壁面と分散相との接触を低減でき、安定な液滴形成が可能となる。

【 0 0 1 3 】

周期構造の周期波長が、液滴化される流体の、円相当直径の $3.0 \sim 10.0$ 倍とすることで、壁面の一部または全体に設けられた周期構造により誘起される擾乱がレイリーの不安定性原理の周期領域と一致するため、極めて径の均一な液滴を形成することが可能となる。

20

液滴を形成する流路の後方に、液滴表面に膜を形成するための工程を備えることによって、マイクロカプセルを生成することが可能となる。

【 0 0 1 4 】

本発明の微小流路を用いて作成した液滴を固化することにより得られる微小粒子は極めて粒子径が均一であるため、トナーなどの表示微粒子として用いた場合、高精細な画質を現像することが可能となる。

マイクロカプセルの粒子径が均一となることでマイクロカプセルを電気泳動表示デバイスに用いた場合、再現画質が向上する。

【 0 0 1 5 】

30

液滴を形成するための流体（分散相）の流体導入流路の出口形状を、その「深さ方向長さ／幅方向長さ」の値が1より大きい断面形状とすることにより、合流流路においてその流体がもう一方の流体（連続相）で覆われている状況にすることができ、断面積変化構造により発生した攪乱を分散相全体に伝えることができる。従って、より揃った液滴を形成することができる。

また、合流流路における断面積変化構造を深さ方向あるいは幅方向のいずれかに形成しているので、精度良く作製することができる。従って、攪乱を均一に発生することができ、より揃った液滴を形成することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【 0 0 1 6 】

40

以下、本発明の実施形態を図を参照して説明する。なお、第1～3の実施形態は参考例として示す。

図1乃至図3に基づいて第1の実施形態を説明する。まず、図3に基づいて、本実施形態における微小液滴生成システム1の概要を説明する。微小液滴生成システム1は、微小流路構造体2と、この微小流路構造体2に供給する流体が収容された流体タンク3、4と、各流体タンク3、4から流体を供給するポンプ5、6と、微小流路構造体2により生成された微小液滴を回収する回収タンク7を有している。

流路パターンを有する微小流路構造体2は、図1及び図2に示すように、2枚のパイレックス（登録商標）ガラス板8、9を張り合わせて構成されている。図1、図2においてハッチング表示はガラス間の融着面を表しており、図1では上側のガラス板9は分かりや

50

すいように破線で表示している。

【 0 0 1 7 】

下側のガラス板 8 には、ガラスエッチング法により流路がパターンニングされている。図 1 に示すように、中央部に 1 つの流体（分散相）を導入する流体導入流路 1 0 が形成されており、流体導入流路 1 0 の両側には、流体導入流路 1 0 に導入される流体とは相溶性の無い（相溶性が実質的に無い場合を含む）流体（連続相）を導入する流体導入流路 1 1、1 1 が形成されている。

【 0 0 1 8 】

ここで、「相溶性の無い流体」とは、2 種の流体の双方への溶解度が 1 0 % 以下である流体同士のことを示す。

「分散相」とは、本発明の液滴化手段により液滴化される流体のことを示す。「連続相」とは、本発明の液滴化手段で発生した液滴を分散させる媒体の流体のことを示す。

これらの流体導入流路 1 0、1 1 に連通して、各流体が合流する合流流路 1 2 が形成されている。合流流路 1 2 における合流始点 1 2 a の流体進行方向（矢印 F 方向）下流側近傍には、両側から台形状に突出して合流流路 1 2 の流路断面積を変化させる（ここでは狭くする）凸構造 1 4 が対向して形成されている。

凸構造 1 4 の形成位置は、分散相の液柱が不安定となって液滴化する領域における、その液滴化をコントロールできる位置に設定されている。凸構造 1 4 による微小液滴形成作用については、後の実施形態の中で説明する。流路断面積を変化させる構成は凹構造でもよい。

図 2 に示すように、上側のガラス板 9 には、上記流路パターンに対応して、流体導入流路 1 0 に連通する流体導入口 1 5、流体導入流路 1 1、1 1 に連通する流体導入口 1 6、1 6、共通出口部 1 3 が形成されている。

【 0 0 1 9 】

流路材料は石英ガラスに限定するものではなく、連続相または分散相により溶解しない樹脂などでもよい。流路サイズは、最終生成物の用途によって異なるが、本発明の効果が発現するためには、流路の幅、深さが 1 0 - 1 0 0 0 μm の範囲である。

ガラスエッチング法により流路を形成する場合は、流路断面積を変化させる凹凸構造は、上述のように流路側面または流路底面、流路天井面に形成可能である。流路底面に形成する場合は 2 段エッチングにより作成することが可能である。

流路断面の形状は円形が望ましいが、流路を構成する部材の加工の都合により長方形などの多角形や略多角形などであってもよい。流路断面積は 1 0 . 0 ~ 1 0 , 0 0 0 [μm^2] の間で変化することが望ましい。凹凸部における流路断面積は、流体導入口の断面積より大きくなっても小さくなってもよい。

また、液（流体）の供給はポンプによる圧力送液方式が適当である。図 1 に示すように、液滴分散体 1 7 は、合流流路 1 2 の下流側端部に位置する共通出口部 1 3 より回収タンク 7 に回収される。

【 0 0 2 0 】

図 4 に第 2 の実施形態を示す。なお上記実施形態と同一部分は同一符号で示し、特に必要がない限り既にした構成上及び機能上の説明は省略して要部のみ説明する（以下の他の実施形態において同じ）。

本実施形態では、流路天井面に合流流路 1 2 の流路断面積を変化させる凸構造 1 8 を形成している。すなわち、凸構造 1 8 は上側のガラス板 9 に形成されている。

従って、本実施形態における微小流路構造体 2 は、凸構造 1 8、導入口 1 5、1 6 及び共通出口部 1 3 をガラス板 9 に形成し、これを下側のガラス板 8 に貼り合わせた構成である。

【 0 0 2 1 】

図 5 に第 3 の実施形態を示す。本実施形態では、液滴化する流体の液柱を複数同時に導入し、微小液滴の生産性を上げることを目的としている。

分散相の流体導入流路 1 0 と、連続相の流体導入流路 1 1 が、流体の進行方向と直交す

10

20

30

40

50

る方向（ガラス板の幅方向）に流体の種類毎に交互に複数並列されている。また、その並列構成は、合流流路 1 2 の壁面に接する端部の流体は連続相となるように設定されている。

導入流路が複数である場合、合流流路 1 2 の流路断面積を変化させる凹凸構造は流路底面もしくは天井面に存在し、各流路に同等の流路断面積の変化を与えることが望ましい。

この観点から、本実施形態では、上側のガラス板 9 に凸構造 2 0 を形成している。3 つ流路に対して 1 つの凸構造 2 0 が同等の流路断面積の変化（微小液滴化作用）を与える。

【 0 0 2 2 】

図 6 及び図 7 に第 4 の実施形態を示す。本実施形態では、合流流路 1 2 に流路断面積が流体進行方向に周期的に変化する領域 2 1 が存在することを特徴とする。

10

図 6 に示すように、領域 2 1 には、凸構造 2 0 が流体進行方向に等間隔に複数設けられており、その結果、凹凸構造が 2 回以上の周期構造をなしている。周期の繰り返し数は多い程望ましいが、液滴化が十分安定に行われるためには繰り返し回数は 1 0 以上 1 0 0 未満が望ましい。但し、これに限定されるものではない。

図 7 に示すように、微小流路において、合流流路 1 2 の壁 2 2 に接する端部の流体 2 3 は必ず連続相である。

【 0 0 2 3 】

次に、合流流路 1 2 における流路断面積の変化に基づく微小液滴化の作用を詳細に説明する。

本発明は、既に公知である、柱状流体の不安定化現象を微小流路内において効率よく実現させるものである。以下、図 8 を用いて液滴化現象を説明する。

20

（液滴化現象）

液柱の均一液滴化現象は、非特許文献 1 に説明されるように、静止流体中に、相溶性のない、無限に長い液柱が存在している場合、液柱が最も不安定になる波長条件は、液柱直径 $d(jet)$ を用いて下記の式（1）で表される。

$$= 4.5 d(jet) \cdots \cdots (1)$$

これは、前記無限に長い液柱ではなく、ある貫通孔より排出された、初速度を持つ液体が静止または流動流体中に液柱状態として放出された場合にも成立する。ここで、発生する擾乱現象の周波数 f は、液柱の速度を v とした場合下記の式（2）で表すことができる。この不安定化により液柱はその形をとどめることが不可能となり、（1）の周期毎の液柱体積分が液滴となる。

30

$$f = v / \cdots \cdots (2)$$

【 0 0 2 4 】

また、非特許文献 2 で説明されるように、実験的に安定に均一粒子を形成する条件を導いた結果、下記の式（3）の条件において安定的に均一粒子を形成することが可能であるとしている。

$$3.5 < \cdots / d(jet) < 7.0 \cdots \cdots (3)$$

式（3）における上限値（3.5）及び下限値（7.0）は、流体の種類により変動する値であり、上限値は 3.0、下限値は 10.0 程度でも成立するが、3.0 ~ 3.5 の間及び 7.0 ~ 10.0 の間の条件は遷移領域であり、液滴径がばらつく場合もあった。

40

更には、非特許文献 3 で説明されるように、エネルギー保存則を基に、貫通孔より排出される液が、液柱を形成する最小ジェット $V(min)$ 速度は下記の式（4）のように表現される。

$$v(min) = (8 \cdots / d(jet))^{(1/2)} \cdots \cdots (4)$$

式（4）において、 γ は液の表面張力、 ρ は液密度、 $d(jet)$ は液柱の直径を表す。式（1）から式（4）の条件式はこのような現象を再現するための条件を推定するために有用であるが、本発明者らは、これらの関係式は液物質の種類、混合物、分散物等によって変動し得ることを確認している。

【 0 0 2 5 】

50

上記条件式により推定された条件に基づいて液滴化を行う場合、一つの液柱において時間的に状態が変化したり、隣り合う液柱の状態がそれぞれ異なったりするため、その結果として不安定化の進行状態が刻々異なり、均一な径の微小液滴を大量に生産することは極めて困難である。

そこで、本発明は、合流流路 1 2 の流路断面積を変化させて 2 流体の界面に擾乱を意図的且つ画一的に誘起し、微妙な条件変化による影響が生じる余地が存在しないようにし、これにより液滴径の安定均一化を実現しようとするものである。

換言すれば、柱状流体の不安定化現象を利用して、径の不均一さが発現する前にその現象をコントロールしようとするものである。

この考えの下、上記各実施形態における凸構造 1 4、凸構造 1 8、凸構造 2 0 及び凹凸周期構造が形成されている。

【 0 0 2 6 】

図 9 に基づいて、凹凸構造による液滴化現象の原理を説明する。

図 9 (a) に示すように、流路を流れる流体の進行方向に法線を持つ平面で流路の断面を見たとき、一定流量で流路を通過する流体の速度は、流路の断面積に反比例する関係がある。すなわち、断面 A では流速は速くなり、断面 B では遅くなる。

流路の壁面に凹凸構造が存在し、その影響により流路の断面積が位置によって変動するとき、前記流路に、流体を一定流量で通過させると、流体の速度は位置によって変動することになる。

前記凹凸構造を持つ微小流路に、図 9 (b) に示すように、相溶性のない分散相流体及び連続相流体を流通させた場合に、上記断面積の変動によって両流体に速度変動をもたらす結果となった。

本発明は、この現象を利用し、上記柱状流体の不安定化現象を安定的に効率よく実現させるものである。

【 0 0 2 7 】

これを第 4 の実施形態における構成に当てはめて考えると、図 1 0 に示すように、周期構造を有する流路に導入された分散相は連続相中で液柱を形成し、領域 2 1 における凹凸周期構造によって 2 流体の界面に擾乱を誘起する。これによって、分散相 2 4 は液滴化し、微小液滴 2 5 が生成する。

図 9 では、流体の進行方向において対称に凹凸の周期構造が存在するモデルを示したが、合流流路 1 2 の一側面、底面または天井面のいずれかに存在しても、流路断面積の変化による擾乱誘起作用は同様に生じる。

また、図 1 1 に示すように、分散相および連続相が交互に配列された系においても凹凸周期構造によって同様の現象が成立する。

凹凸周期構造が各柱状流体に対して均等に作用するので、各分散相から生成する微小液滴は、均一な径となる。

周期構造に比べて単一の凸構造又は凹構造の場合には、径の均一化の精度は劣るが、上記「擾乱を意図的且つ画一的に誘起し」てなる作用による均一安定化機能は享受できる。

【 0 0 2 8 】

レイリーの不安定性原理によれば、最も液柱が不安定になる擾乱の波長は、分散相の液柱直径のおよそ 4 . 5 倍であり、3 . 0 倍 ~ 1 0 . 0 倍の間で液滴化は安定に成立するとされている。液柱の直径は、連続相の速度を増減させることによって減少させたり増加させたりすることが可能である。

従って、周期構造の波長が、分散相最細部（合流直前における円相当直径）の 3 . 0 ~ 1 0 . 0 倍の範囲となることが望ましい。より好ましくは 3 . 5 倍 ~ 7 . 0 倍の間である。

【 0 0 2 9 】

凹凸の周期構造の形状としては、図 1 2 に示すように、一辺と隣接する一辺の角度が直角である矩形波形状はもちろんのこと、図 1 3 に示す矩形波状の形状としてもよい。これらの形状は、所定の速度条件において、サテライトが影響しない領域になるよう適宜決定

10

20

30

40

50

されるものである。

矩形波状とは、一辺と隣接する一辺の角度が直角ではない形状（例えば図 1 3（a））を含み、三角波形（例えば図 1 3（b））、曲面波形（例えば図 1 3（c））もこれに該当する。

図 1 4 に示すように、2 以上の任意の矩形波状の組み合わせとしてもよい。この場合、2 以上の任意形状 2 6 及び 2 7 を組み合わせた一組 2 8 をもって 1 周期構造とみなすものとする。これら形状も所定の速度条件において、サテライトが影響しない領域になるよう適宜決定されるものである。

【 0 0 3 0 】

図 1 5 に第 5 の実施形態を示す。

本実施形態では、液滴形成流路の後方（流体進行方向下流）に、液滴表面に膜を形成するための工程を備えることを特徴とする。より具体的には、主流路 2 9 に、分岐流路 3 0 より膜形成材料 3 1 を含む流体を導入する。このとき材料の液滴表面への析出や表面化学反応による膜形成手段を適用することができる。

既に説明した実施形態の構成において、分岐流路 3 0 は周期構造の下流に設けられる。分岐流路 3 0 と、膜形成材料 3 1 を供給する図示しない手段とにより、液滴の表面に膜を形成するための手段が構成される。

膜形成工程は、必ずしも流路系で行う必要は無く、流路出口にて回収されたエマルジョンに、一般的なカプセル化工程を施してもよい。

【 0 0 3 1 】

液滴形成方法により作成された微小液滴を固化して作成された微粒子をトナーとして用いた場合、分散値が 5 % 以下であれば画質の粒状性及び粉体としての流動性が優れたトナーを提供することが可能となる。

第 5 の実施形態における液滴形成方法により作成され、分散値が 5 % 以下であるマイクロカプセルを電気泳動マイクロカプセルとして用いた場合、粒子径の均一性により、白色度の高い電子ペーパーを提供することが可能となる。

【 0 0 3 2 】

以下に本発明を実施する上での構成・材料に関する好適指針を示す。

（流路構造、流体導入口、流体排出口）

パイレックス（登録商標）ガラスに通常のガラスエッチング法により流路パターンを形成し、流体の出入り口を持つ、もう一枚のパイレックス（登録商標）ガラスを重ね合わせ、位置合わせ後、熱融着にて接合し、出入り口を有する流路が形成される。

（流体搬送ポンプ）

流体を搬送する手段としては、シリンジポンプ、不活性ガスによる加圧式送液方式、蠕動ポンプ、ダイヤフラムポンプがあるが、これらに限られるものではない。マイクロメートルオーダーの流路に液体を導入するため、圧力損失がおおよそ 1 0 0 k P a - 1 0 0 0 k P a 程度の加圧が可能なポンプを利用する。

以下の実施例においては、不活性ガスによる加圧式送液方式を用いた。不活性ガスとしては、使用する薬液に対し不活性であればよく、以下の実施例においては、窒素ガスを用いた。

【 0 0 3 3 】

（配管、接続）

配管は使用する薬液に不活性であり、溶解しないことが必要である。更に、耐圧性が必要である。薬液の種類に依存するが、材質としては、テフロン（登録商標）、各種金属、P E E K 等があるが、これらに限られるものではない。以下の実施例においては P E E K 製の配管を使用した。

配管と配管、配管と液タンク、配管と流路構造体などの接続には、使用する薬液に不活性であり、溶解しないこと、漏れのないことが必要である。更に、耐圧性が必要であり、使用条件によって選択される。

接続方式としては、ゴム製 O リング、テフロン（登録商標）樹脂製 O リングによる接続

10

20

30

40

50

、接着剤による接続、フランジによる接続などがあるが、これらに限るものではない。材質としては、薬液の種類に依存するが、テフロン（登録商標）、各種金属、P E E K等があるが、これらに限られるものではない。以下の実施例においてはP E E K製のフランジ式接続方式を使用した。これらは、高圧液体クロマトグラフィー等に用いられる一般的に入手可能なものを用いた。

（造粒工程概観）

図16に、以下の実施例において用いた造粒工程の概要を示す。乾燥窒素による圧力送液機構121により連続相及び分散相が微小流路構造体122へと導入される。配管123と微小流路構造体122はコネクタにより接続されている。

生成したエマルションは回収容器124へ捕集された。連続相及び分散相の流量は圧力送液機構の配管に設置されたニードルバルブ125によって行った。各流体に与えられる圧力は圧力ゲージ126により確認した。更に、微小流路構造体及び配管、貯蔵タンクは温度調節機構により-20度から150度まで温度を調節することが可能であった。

【0034】

（分散相及び連続相材料、分散剤、界面活性剤）

本発明の方式においては、分散相及び連続相は、相溶性が10%以下であれば適用可能であるが、1%以下の相溶性であることがより好ましい。液滴化の際には、通常の分散剤または界面活性剤を必要としないが、回収時に合一の可能性があるため、臨界濃度以上に含有させておく、または後工程によって添加することが望ましい。

分散剤の材料としては、ゼラチン、ポリビニルアルコールが挙げられる。更に、アルキルベンゼンスルホン酸塩、 α -オレフィンスルホン酸塩、リン酸エステルなどの陰イオン界面活性剤、アルキルアミン塩、アミノアルコール脂肪酸誘導体、ポリアミン脂肪酸誘導体、イミダゾリンなどのアミン塩型や、アルキルトリメチルアンモニウム塩、ジアルキルジメチルアンモニウム塩、アルキルジメチルベンジルアンモニウム塩、ピリジニウム塩、アルキルイソキノリニウム塩、塩化ベンゼトニウムなどの四級アンモニウム塩型の陽イオン界面活性剤、脂肪酸アミド誘導体、多価アルコール誘導体などの非イオン界面活性剤、例えばアラニン、ドデシルジ（アミノエチル）グリシン、ジ（オクチルアミノエチル）グリシンやN-アルキル-N,N-ジメチルアンモニウムベタインなどの両性界面活性剤が挙げられる。

【0035】

またフルオロアルキル基を有する界面活性剤を用いることにより、非常に少量でその効果をあげることができる。好ましく用いられるフルオロアルキル基を有するアニオン性界面活性剤としては、炭素数2～10のフルオロアルキルカルボン酸及びその金属塩、パーフルオロオクタンスルホン酸ジナトリウム、3-[オメガフルオロアルキル(C6～C11)オキシ]-1-アルキル(C3～C4)スルホン酸ナトリウム、3-[オメガフルオロアルカノイル(C6～C8)-N-エチルアミノ]-1-プロパンスルホン酸ナトリウム、フルオロアルキル(C11～C20)カルボン酸及び金属塩、パーフルオロアルキルカルボン酸(C7～C13)及びその金属塩、パーフルオロアルキル(C4～C12)スルホン酸及びその金属塩、パーフルオロオクタンスルホン酸ジエタノールアミド、N-プロピル-N-(2ヒドロキシエチル)パーフルオロオクタンスルホンアミド、パーフルオロアルキル(C6～C10)スルホンアミドプロピルトリメチルアンモニウム塩、パーフルオロアルキル(C6～C10)-N-エチルスルホン酸グリシン塩、モノパーフルオロアルキル(C6～C16)エチルリン酸エステルなどが挙げられる。

【0036】

商品名としては、サーフロンS-111、S-112、S-113（旭硝子社製）、フロラードFC-93、FC-95、FC-98、FC-129（住友3M社製）、ユニダインDS-101、DS-102、（タイキン工業社製）、メガファックF-110、F-120、F-113、F-191、F-812、F-833（大日本インキ社製）、エクトップEF-102、103、104、105、112、123A、123B、306A、501、201、204、（トーケムプロダクツ社製）、フタージェントF-100

、F 1 5 0（ネオス社製）などが挙げられる。

また、カチオン界面活性剤としては、フルオロアルキル基を有する脂肪族一級、二級もしくは二級アミン酸、パーフルオロアルキル（C 6－C 1 0）スルホンアミドプロピルトリメチルアンモニウム塩などの脂肪族4級アンモニウム塩、ベンザルコニウム塩、塩化ベンゼトニウム、ピリジニウム塩、イミダゾリニウム塩、商品名としてはサーフロンS－1 2 1（旭硝子社製）、フロラードFC－1 3 5（住友3 M社製）、ユニダインDS－2 0 2（ダイキン工業社製）、メガファックF－1 5 0、F－8 2 4（大日本インキ社製）、エクトップEF－1 3 2（トーケムプロダクツ社製）、フタージェントF－3 0 0（ネオス社製）などが挙げられる。

【0 0 3 7】

高分子系保護コロイドにより分散液滴の安定化を調節しても良い。例えばアクリル酸、メタクリル酸、 α -シアノアクリル酸、 β -シアノメタクリル酸、イタコン酸、クロトン酸、フマル酸、マレイン酸または無水マレイン酸などの酸類、あるいは水酸基を含有する（メタ）アクリル系単量体、例えばアクリル酸 α -ヒドロキシエチル、メタクリル酸 α -ヒドロキシエチル、アクリル酸 α -ヒドロキシプロピル、メタクリル酸 α -ヒドロキシプロピル、アクリル酸 α -ヒドロキシプロピル、メタクリル酸 α -ヒドロキシプロピル、アクリル酸 3-クロロ-2-ヒドロキシプロピル、メタクリル酸 3-クロロ-2-ヒドロキシプロピル、ジエチレングリコールモノアクリル酸エステル、ジエチレングリコールモノメタクリル酸エステル、グリセリンモノアクリル酸エステル、グリセリンモノメタクリル酸エステル、N-メチロールアクリルアミド、N-メチロールメタクリルアミドなど、ビニルアルコールまたはビニルアルコールとのエーテル類、例えばビニルメチルエーテル、ビニルエチルエーテル、ビニルプロピルエーテルなど、またはビニルアルコールとカルボキシル基を含有する化合物のエステル類、例えば酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、酪酸ビニルなど、アクリルアミド、メタクリルアミド、ジアセトンアクリルアミドあるいはこれらのメチロール化合物、アクリル酸クロライド、メタクリル酸クロライドなどの酸クロライド類、ビニルピリジン、ビニルピロリドン、ビニルイミダゾール、エチレンイミンなどの窒素原子、またはその複素環を有するものなどのホモポリマーまたは共重合体、ポリオキシエチレン、ポリオキシプロピレン、ポリオキシエチレンアルキルアミン、ポリオキシプロピレンアルキルアミン、ポリオキシエチレンアルキルアミド、ポリオキシプロピレンアルキルアミド、ポリオキシエチレンノニルフエニルエーテル、ポリオキシエチレンラウリルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンステアリルフェニルエステル、ポリオキシエチレンノニルフエニルエステルなどのポリオキシエチレン系、メチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロースなどのセルロース類などが使用できる。

分散剤を使用した場合は、分散剤が液滴表面に付着したまま使用することも可能であるが、液滴の絶縁性が重要である場合は、これを除去する場合がある。

【0 0 3 8】

（カプセル化工程）

コアセルベーション法、紫外線硬化法等が適用可能である。以下の実施例においては、単純コアセルベーション法を用いた。より具体的には、4 5 度に暖めた1 0 %ゼラチン水溶液中に、流路構造体より排出されたエマルジョンを導入し、これに徐々にエタノールを加える。エタノール濃度を5 0 %程度とし、これを冷却することによってコロイドはマイクロカプセル化した。

（液滴固化工程）

架橋反応可能なモノマー及びラジカル重合反応開始材を分散相に含有し、紫外線または熱により重合反応させ、固化することが可能である。

（粒子径評価手段）

回収された液滴またはカプセルを一部採取して、プレパラート上で顕微鏡により観察し、画像解析法を用いて1 0 0 0 個の粒子画像より平均粒子径及び分散値（直径の標準偏差）/（直径の平均値）を求めた。

(並列化)

微小流路構造体 1 2 2 は、図 1 7 に模式的に示すように、多数並列して稼働する場合、各構造体に均一に流体が送液されるよう、各構造体導入部手前で流量調節機構 1 3 2 を設けた。

【 0 0 3 9 】

さらに検討を重ねた結果、分散相と連続相の流路が合流する部分において、分散相流路の出口部分の形状が液滴の形成に関係することが新たに判明した。

すなわち、分散相と連続相の流路が配置されている方向を幅方向、該幅方向に垂直な方向を深さ方向とした場合、分散相の流路の出口形状（合流流路 1 2 との境界形状）を、「深さ方向長さ / 幅方向長さ」（アスペクト比）の値が 1 より大きい断面形状とすることにより、液滴が良好に形成できることを見出した。

10

第 1 の流路である流体導入流路 1 0 に分散相、第 2、3 の流路である流体導入流路 1 1 に連続相を導入し、深さ方向に凹凸を配置した様子を図 2 2 に、流体導入流路 1 0 に分散相、流体導入流路 1 1 に連続相を導入し、幅方向に凹凸を配置した様子を図 2 3 に示す。図 2 2、図 2 3 において、分散相の流路が連続相の流路と合流する部分の、出口形状の深さ方向と幅方向との比が重要である。

【 0 0 4 0 】

この比（アスペクト比）による液滴形成の違いをシミュレーションにより求めた。シミュレーションには、熱流体解析ソフトである F L U E N T を用いて行った。

図 2 4、2 5、2 6、2 7 にシミュレーション結果の一例を示す。図 2 4、2 5 は、図 2 2 に対応した凹凸が深さ方向に配置されている場合で、図 2 4 はアスペクト比が 1 . 5、図 2 5 はアスペクト比が 0 . 5 のときを示している。

20

図 2 6、2 7 は、図 2 3 に対応した凹凸が幅方向に配置されている場合で、図 2 6 はアスペクト比が 4、図 2 7 はアスペクト比が 0 . 5 のときを示している。

図 2 5、図 2 7 に示すように、アスペクト比が 0 . 5 の場合、液滴 2 5 が形成できない。図 2 4、図 2 6 に示すようにアスペクト比がある程度大きい場合、液滴 2 5 が形成できる。

【 0 0 4 1 】

このシミュレーションの結果より、アスペクト比が大きいときに液滴が形成できることがわかる。この理由を図 2 4 と図 2 5 に示すモデルを用いて説明する。

30

図 2 8 (a) に示すように、流体導入流路 1 0 においては、分散相 2 4 は断面形状が流路と同じ形状であるが、連続相 2 3 と合流して層流状態になると、図 2 8 (b) に示すように、表面張力により断面が円になろうとし、最終的に円柱を形成する。図 2 4 の場合、高アスペクトの縦長の断面から円の断面になるため、深さ方向の上下に隙間が発生する。その隙間に連続相 2 3 が入り込む。

【 0 0 4 2 】

これに対し、図 2 5 の場合、図 2 9 に示すように、低アスペクトの横長の断面から円の断面になるため、深さ方向の上下に隙間が発生しない。従って、上下に連続相 2 3 が入り込むスペースが無い。

図 2 4 の場合、図 2 8 (b) に示すように分散相 2 4 が連続相 2 3 で覆われている状況が発生する。図 2 5 の場合、図 2 9 (b) に示すように分散相 2 4 が連続相 2 3 で覆われている状況にならない。液滴が形成されるには、分散相 2 4 が連続相 2 3 で覆われている状態が必要となる。

40

図 2 6、2 7 に示す場合も同様の関係となる。

【 0 0 4 3 】

ここで、どの程度のアスペクト比が液滴形成に必要なかが重要である。アスペクト比と液滴形成の関係のシミュレーション結果を表 1 と表 2 に示す。表 1 は幅方向に凹凸がある場合、表 2 は深さ方向に凹凸がある場合で、連続相の粘度とアスペクト比による液滴形成性の結果である。

【 0 0 4 4 】

50

【表 1】

幅方向に凹凸配置での液滴の形成結果

		連続相粘度 (cSt)			
		1	1.5	2	10
ア ス ペ ク ト 比	0.5				×
	1	×	○	○	○
	1.5	○			
	2	○			
	4				○

※空欄：未計算

【 0 0 4 5 】

【表 2】

深さ方向に凹凸配置での液滴の形成結果

		連続相粘度 (cSt)			
		1	1.5	2	10
ア ス ペ ク ト 比	0.5	×	×		
	1	○	○		
	1.5	○			
	2				
	4				

※空欄：未計算

【 0 0 4 6 】

表 1 の幅方向に凹凸が配置されているときを説明する。アスペクト比が 0.5 の場合、液滴が形成されないことがわかる。表 1 のアスペクト比が 1 の場合より、連続相の粘度が大きいほど液滴が形成されやすくなることがわかる。連続相の粘度は、水の粘度 (1 cSt) よりも小さくなることはない。

液滴が形成されやすくするため、水あるいはそれに準ずる液体に界面活性剤などを混合するので、粘度が大きくなる場合が多い。また、粘度が大きくなると流路に流しにくくなるので、連続相の粘度が 1 ~ 10 cSt は、シミュレーションの範囲として妥当である。アスペクト比が 1 より大きくなると、連続相の粘度に関係なく液滴が形成される。

【 0 0 4 7 】

表 2 の深さ方向に凹凸が配置されているときを説明する。表 1 の結果を考慮すると、アスペクト比が 0.5 で、連続相の粘度が大きい場合、液滴が形成不可能と推定される。また、アスペクト比が 1 より大きい場合、連続相の粘度に関係なく液滴が形成できると推定される。

今回、連続相の粘度との関係について表にまとめているが、分散相の粘度あるいは分散相と連続相の流速との関係についてもシミュレーションを行っている。連続相の粘度の場合、幅方向に凹凸がある場合のみ僅かに影響が見られたが、分散相の粘度あるいは分散相と連続相の流速については、影響がみられないことを確認している。

実際に液滴を形成する場合、連続相に水そのものを使用することはなく、水に界面活性

10

20

30

40

50

剤など溶かすことや、水以外の液体を使用するので、粘度は1 c S tよりも大きくなる。従って、凹凸が幅方向あるいは深さ方向のいずれにおいても、アスペクト比が1より大きければ液滴が形成されることがわかる。

【0048】

以上のことより、請求項1においてアスペクト比を1より大きい範囲とした。

アスペクト比の上限に関しては、液柱の上下に隙間が発生すれば上下に連続相が入り込むので、大きいほど良いということになる。実際に高アスペクト比の流路を形成することは難しいので、實際上製造できる上限として捉えることができる。

【0049】

(実施例1)

パイレックス(登録商標)ガラスにエッチングにより流路構造を施した、略矩形波形状凸部単一構造体(図4)を用い液滴化を行った。分散相導入口の断面形の、幅方向長さは20 μm、深さ方向長さは40 μmであり、凸部の高さは4.9 μm、凸部の幅は8.2 μmであった。連続相と分散相の合流部は、幅100 μm、深さ40 μmであった。

分散相としては、アイソパーG(登録商標;エクソンモービル社)に顔料成分を分散した液を用いた。連続相としては、イオン交換水にゼラチンを2.0%溶解した液を用いた。以下の実施例、比較例において、分散相及び連続相の組成は上記のものを用いた。分散相流体に与えた圧力は150 kPaであった。また、連続相流体に与えた圧力は320 kPaであった。造粒を5時間継続し、得られた液滴の平均直径は48.0 μm、分散値は8.2%、収量は21 gであった。

【0050】

(実施例2)

パイレックス(登録商標)ガラスにエッチングにより流路構造を施した、略矩形波形状周期構造体(図18;第6の実施形態)を用い液滴化を行った。分散相導入口の断面形の、幅方向長さは20 μm、深さ方向長さは40 μmであり、周期構造の周期は100 μmであった。連続相と分散相の合流部は、幅100 μm、深さ40 μmであった。

分散相流体に与えた圧力は150 kPaであった。連続相流体に与えた圧力は320 kPaであった。造粒を5時間継続し、得られた液滴の平均直径は48.0 μm、分散値は1.2%、収量は25 gであった。

【0051】

(実施例3)

パイレックス(登録商標)ガラスにエッチングにより流路構造を施した、略矩形波形状周期構造体(図6)を用い液滴化を行った。分散相導入口の断面形の、幅方向長さは20 μm、深さ方向長さは40 μmであり、周期構造の周期は100 μmであった。連続相と分散相の合流部は、幅100 μm、深さ40 μmであった。

分散相流体に与えた圧力は150 kPaであった。連続相としては、連続相流体に与えた圧力は320 kPaであった。造粒を5時間継続し、得られた液滴の平均直径は45.0 μm、分散値は1.8%、収量は142 gであった。

【0052】

(実施例4)

パイレックス(登録商標)ガラスにエッチングにより流路構造を施した、略矩形波形状周期構造体(図6)を、図17のように10枚並列で用い、液滴化を行った。分散相導入口の断面形の、幅方向長さは20 μm、深さ方向長さは40 μmであり、周期構造の周期は100 μmであった。連続相と分散相の合流部は、幅100 μm、深さ40 μmであった。

分散相流体に与えた圧力は250 kPaであった。連続相としては、連続相流体に与えた圧力は480 kPaであった。造粒を5時間継続し、得られた液滴の平均直径は52.0 μm、分散値は4.8%、収量は512 gであった。

【0053】

(実施例5)

パイレックス（登録商標）ガラスにエッチングにより流路構造を施した、略矩形波形状周期構造体（図 1 9；第 7 の実施形態）を用い、液滴化を行った。分散相導入口の断面形の、幅方向長さは 20 μm 、深さ方向長さは 40 μm であり、周期構造の周期は 100 μm であった。連続相と分散相の合流部は、幅 100 μm 、深さ 40 μm であった。凹部は深さ 5.0 μm 、長さ 12 μm であった。凸部は高さ 8.0 μm 、長さは 88 μm であった。

分散相流体に与えた圧力は 110 kPa であった。連続相としては、連続相流体に与えた圧力は 300 kPa であった。造粒を 5 時間継続し、得られた液滴の平均直径は 42.0 μm 、分散値は 0.5 %、収量は 20 g であった。

【0054】

（比較例 1）Y 字流路

パイレックス（登録商標）ガラスにエッチングにより流路構造を施した、Y 字形状流路構造体 50（図 2 1）を用い液滴化を行った。分散相導入口の断面積の、円相当直径は 60 μm であった。連続相と分散相の合流部は、幅 100 μm 、深さ 40 μm であった。

分散相流体に与えた圧力は 100 kPa であった。連続相としては、連続相流体に与えた圧力は 120 kPa であった。造粒を 5 時間継続し、得られた液滴の平均直径は 74.0 μm 、分散値は 1.5 %、収量は 0.6 g であった。

【0055】

実施例 1 から 5 及び比較例 1 において得られた液滴の粒子径、分散値、収量等をそれぞれ表 3 に示す。

【0056】

【表 3】

	粒子径 [μm]	分散値 [%]	収量 [g]	液柱数 [分散相]	凹凸構造の 周期性・形状
実施例 1	48	8.2	21	単	凸単:矩形波
実施例 2	48	1.2	25	単	周期:矩形波
実施例 3	45	1.8	142	複	周期:矩形波
実施例 4	52	4.8	512	複	周期:矩形波 (流路構造体並列)
実施例 5	42	0.5	20	単	周期:略矩形波 組み合わせ
比較例 1	74	1.5	0.6	単	なし

【0057】

表 3 に示す結果から、以下のことが判る。

- （1）流体の界面に擾乱を誘起する凹凸構造が存在する場合（実施例 1～5）、ない場合（比較例 1）に比べて粒子径（微小液滴径）を小さくできる。
- （2）凹凸構造が単一の場合（実施例 1）に比べて、周期性がある場合には分散値が低く、径の均一性が高い。

(3) 周期構造の中でも、異なる略矩形波の組み合わせの場合(実施例5)、径の均一性がさらに高まる。

(4) 流体の界面に擾乱を誘起する凹凸構造が存在する場合(実施例1~5)、ない場合(比較例1)に比べて収量性(生産性)が高い。

(5) 周期構造を設け且つ液柱相数を増やすことにより、粒子径が小さく径の均一性が高い液滴の収量を増大させることができる(大量生産性)。

【0058】

(実施例6) マイクロカプセル化

実施例5において作成した粒子を上記のコアセルベーション法によって皮膜を形成し、マイクロカプセルを作成した。マイクロカプセルの粒子径は $42\mu\text{m}$ であり、分散値は1.5%であった。これをフィルム基板上に塗布したところ、非常に密な充填構造のカプセル膜を形成することができた。

【0059】

上記各実施形態では、凹凸構造が合流流路12の壁面に常設された構成としたが、必要時のみ凹凸構造が発現する構成としてもよい。例えば、流路構造体をゴム質系材料で形成し、合流流路12の壁面の硬度が流体の進行方向に間隔をおいて異なるようにし、硬度の低い部分が流体の圧力で凹むことにより凹凸の周期構造が発現するようにしてもよい。

また、図20に示すように、流路構造体40の合流流路の壁面に硬度の低い軟質部40aを設け、この軟質部40aを制御される可動ロッド41により押圧して内方に凹ませるようにしてもよい(第8の実施形態)。

可動ロッド41のストロークを調整することにより、凹凸の深さを微調整できる。

【図面の簡単な説明】

【0060】

【図1】本発明の第1の実施形態における微小流路構造体の斜視図である。

【図2】図1で示した微小流路構造体の詳細図で、(a)は上側のガラス板の平面図、(b)は下側のガラス板の平面図、(c)は縦断面図である。

【図3】図1で示した微小流路構造体を有する微小液滴生成システムの構成図である。

【図4】第2の実施形態における微小流路構造体の詳細図で、(a)は上側のガラス板の平面図、(b)は下側のガラス板の平面図、(c)は縦断面図である。

【図5】第3の実施形態における微小流路構造体の詳細図で、(a)は下側のガラス板の平面図、(b)は上側のガラス板の平面図、(c)は縦断面図である。

【図6】第4の実施形態における微小流路構造体の詳細図で、(a)は下側のガラス板の平面図、(b)は上側のガラス板の平面図、(c)は縦断面図である。

【図7】第4の実施形態における微小流路構造体の流体導入状態を示す平面図である。

【図8】一般的な液滴化現象を説明するための模式図である。

【図9】凹凸構造による液滴化現象を説明するための模式図である。

【図10】凹凸周期構造による液滴化現象を説明するための模式図である。

【図11】分散相と連続相が交互に配列された系における凹凸周期構造による液滴化現象を説明するための模式図である。

【図12】凹凸周期構造の形状を示す図である。

【図13】凹凸周期構造の他の形状を示す図である。

【図14】凹凸周期構造の更に他の形状を示す図である。

【図15】第5の実施形態における液滴表面に膜を形成する工程(手段)を示す図である。

【図16】造粒工程(微小液滴生成システム)の概要図である。

【図17】微小流路構造体を並列化して大量生産するシステムの構成図である。

【図18】第6の実施形態における微小流路構造体の詳細図で、(a)は上側のガラス板の平面図、(b)は下側のガラス板の平面図、(c)は縦断面図である。

【図19】第7の実施形態における微小流路構造体の詳細図で、(a)は上側のガラス板の平面図、(b)は下側のガラス板の平面図、(c)は縦断面図である。

【図 20】第 8 の実施形態における微小流路構造体の要部平面図である。

【図 21】比較例における Y 字流路を有する微小液滴生成システムの構成図である。

【図 22】深さ方向に凹凸を配置した微小流路構造体の基本構成を示す図である。

【図 23】幅方向に凹凸を配置した微小流路構造体の基本構成を示す図である。

【図 24】深さ方向に凹凸を配置した構成で且つアスペクト比が 1.5 の場合の液滴形成動作のシミュレーション結果を示す図である。

【図 25】深さ方向に凹凸を配置した構成で且つアスペクト比が 0.5 の場合の液滴形成動作のシミュレーション結果を示す図である。

【図 26】幅方向に凹凸を配置した構成で且つアスペクト比が 4 の場合の液滴形成動作のシミュレーション結果を示す図である。

【図 27】幅方向に凹凸を配置した構成で且つアスペクト比が 0.5 の場合の液滴形成動作のシミュレーション結果を示す図である。

【図 28】図 24 の構成における流体の合流動作を示す模式図で、(a) は合流前の状態を示す図、(b) は合流後の状態を示す図である。

【図 29】図 25 の構成における合流動作を示す模式図で、(a) は合流前の状態を示す図、(b) は合流後の状態を示す図である。

【符号の説明】

【0061】

2 微小流路構造体

10、11 流体導入流路

12 合流流路

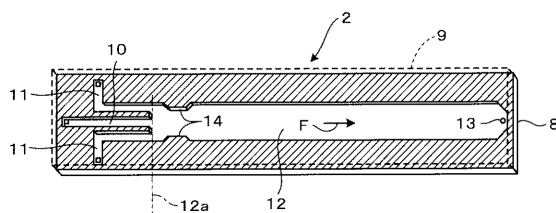
13 共通出口部

21 領域

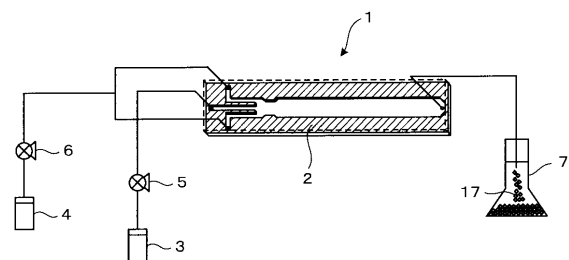
23 連続相

25 微小液滴

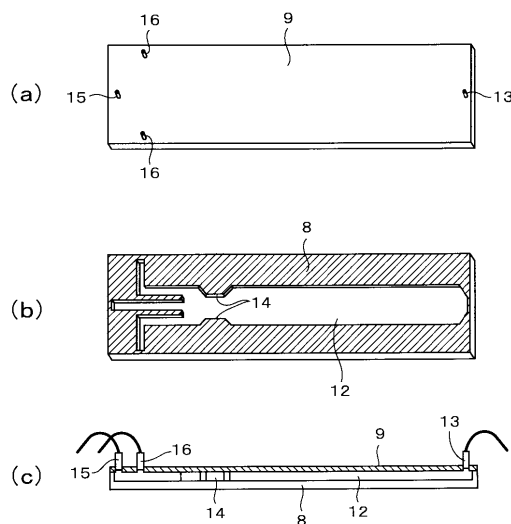
【図 1】



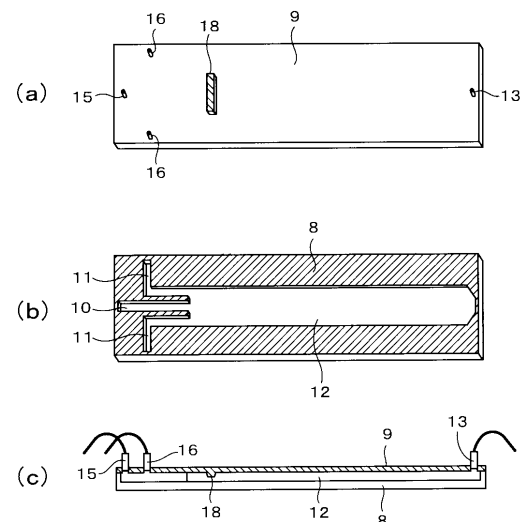
【図 3】



【図 2】



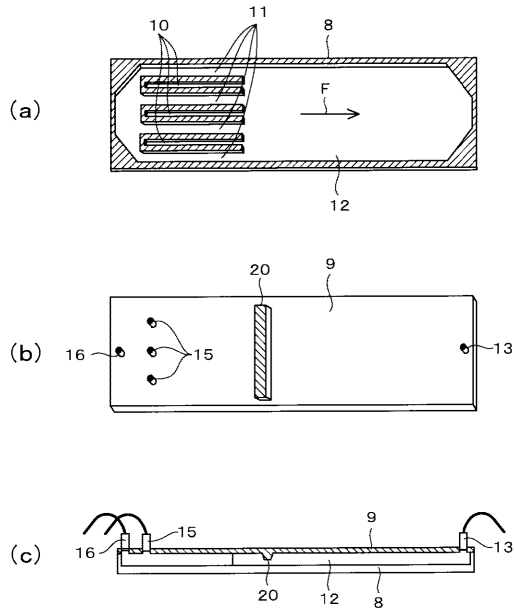
【図 4】



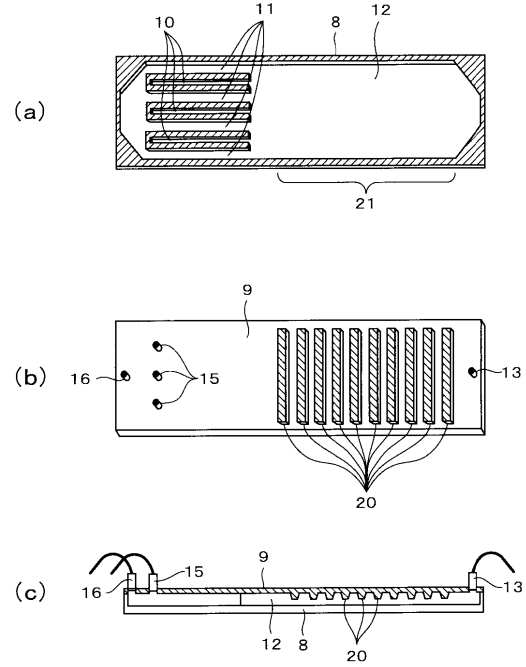
10

20

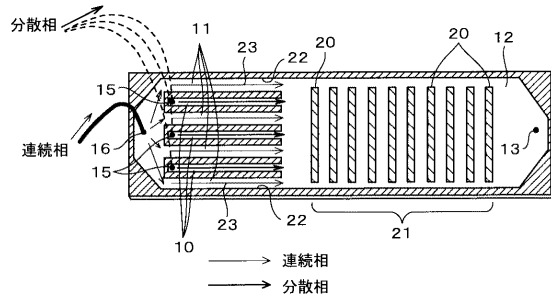
【図 5】



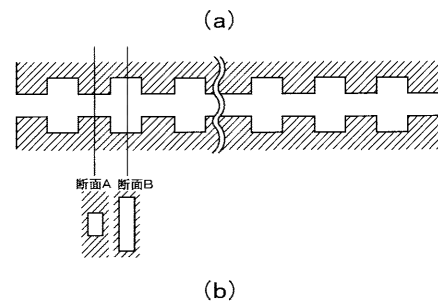
【図 6】



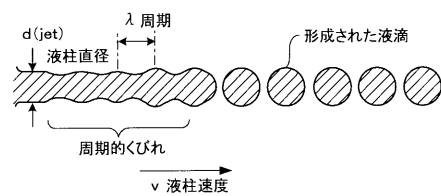
【図 7】



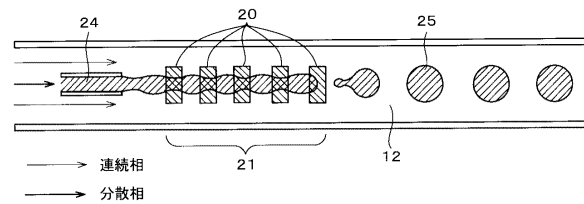
【図 9】



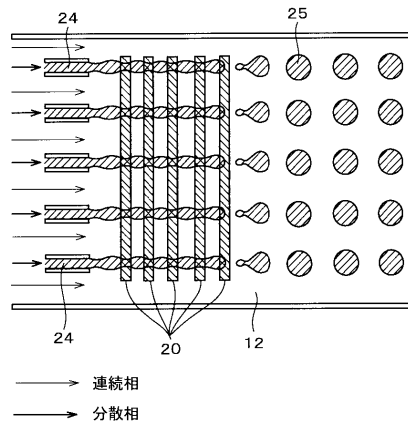
【図 8】



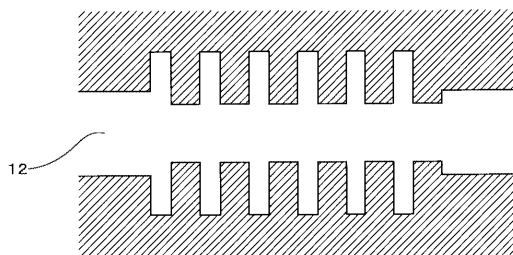
【図 10】



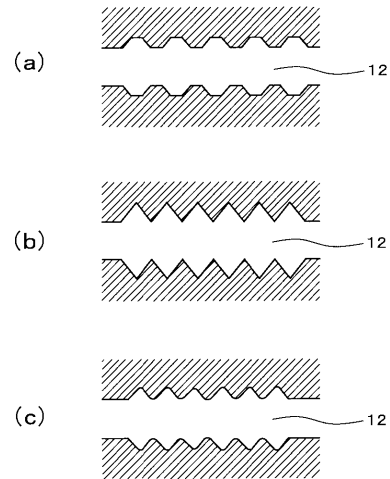
【図 1 1】



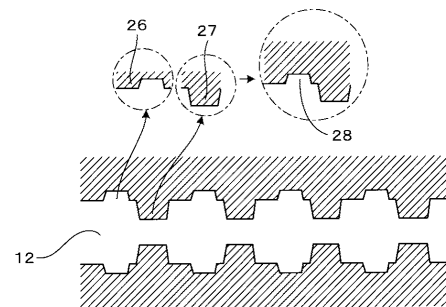
【図 1 2】



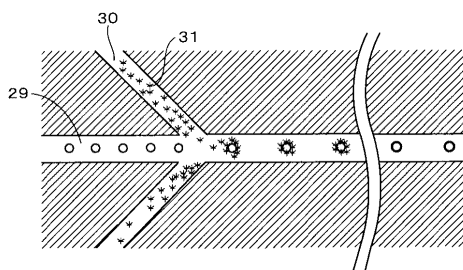
【図 1 3】



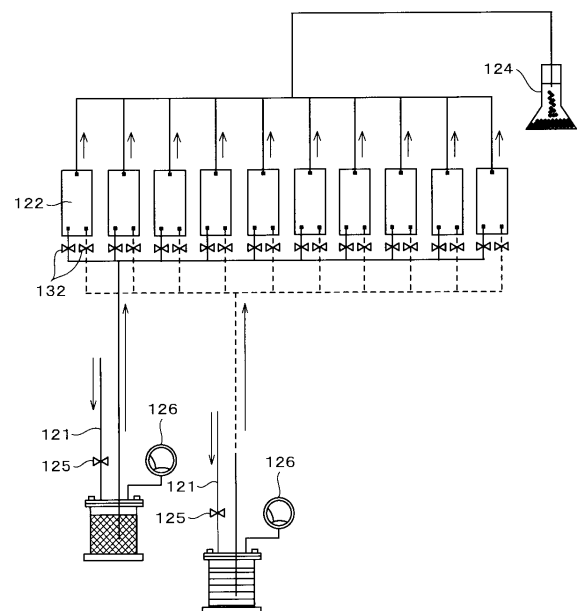
【図 1 4】



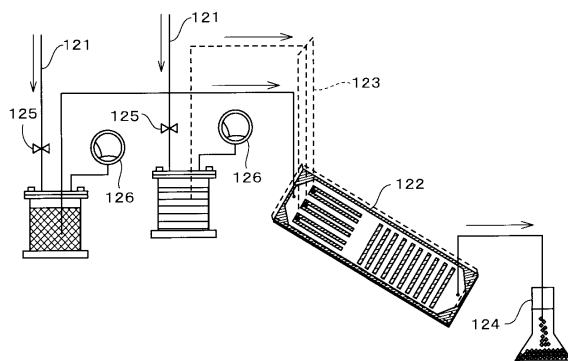
【図 1 5】



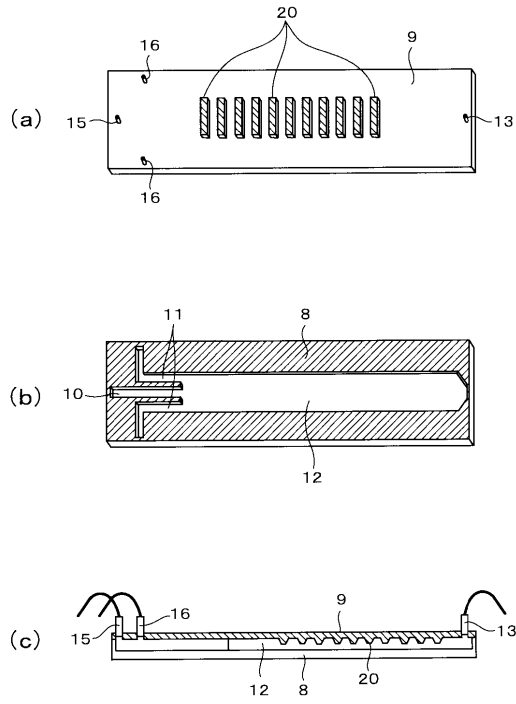
【図 1 7】



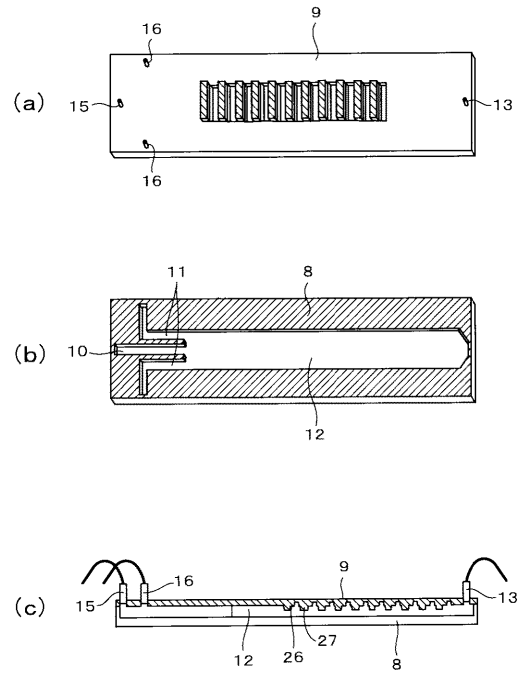
【図 1 6】



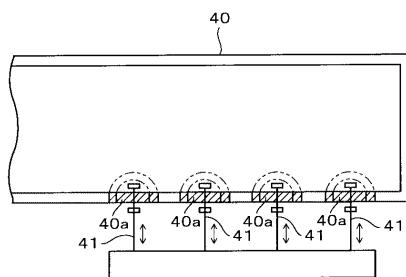
【図 18】



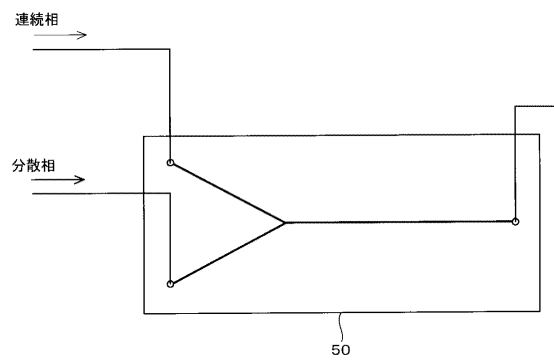
【図 19】



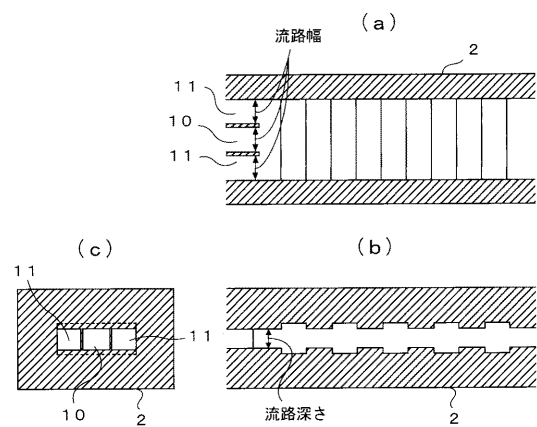
【図 20】



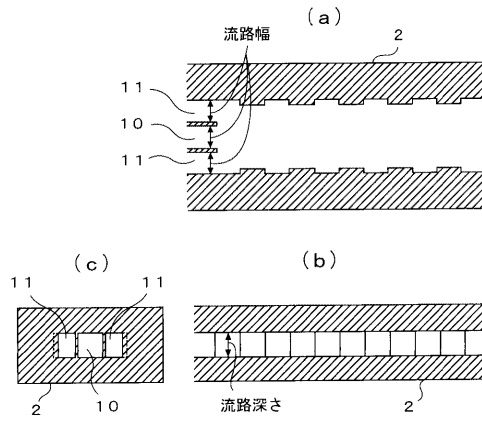
【図 21】



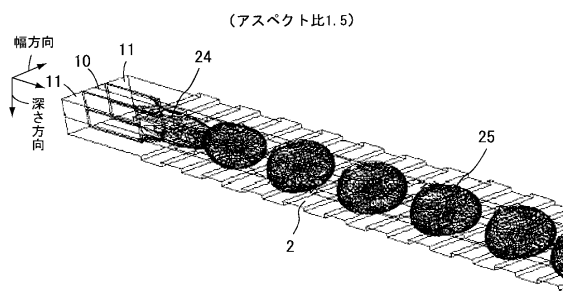
【図 22】



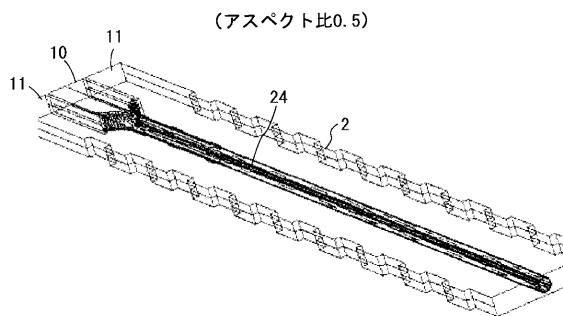
【図 23】



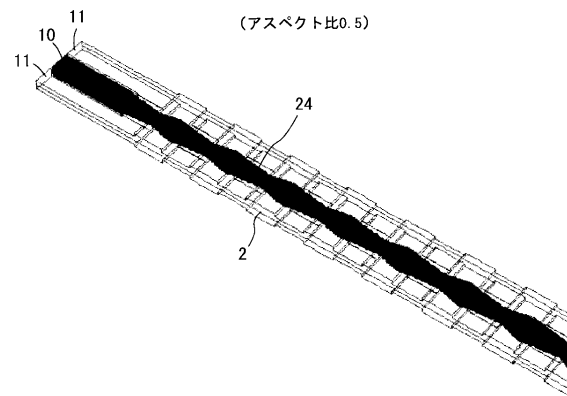
【図 24】



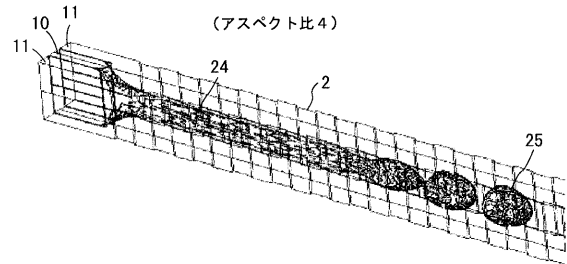
【図 27】



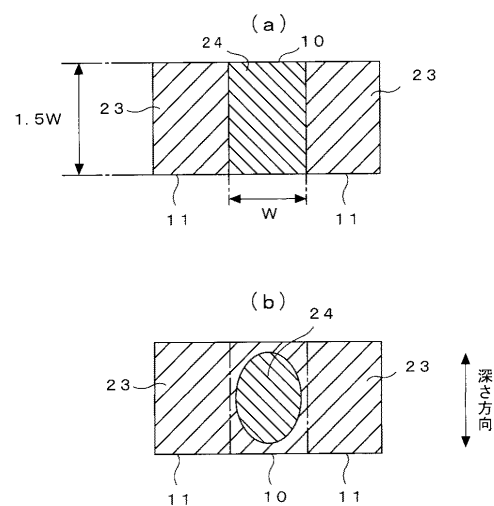
【図 25】



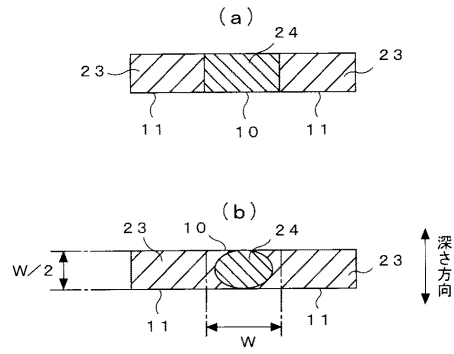
【図 26】



【図 28】



【図 29】



フロントページの続き

- (72)発明者 大垣 傑
東京都大田区中馬込 1 丁目 3 番 6 号・株式会社リコー内
- (72)発明者 手塚 伸治
東京都大田区中馬込 1 丁目 3 番 6 号・株式会社リコー内
- (72)発明者 宮澤 秀之
東京都大田区中馬込 1 丁目 3 番 6 号・株式会社リコー内

審査官 安積 高靖

- (56)参考文献 特開 2 0 0 4 - 1 2 2 1 0 7 (J P , A)
米国特許出願公開第 2 0 0 4 / 0 0 2 7 9 1 5 (U S , A 1)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

B 0 1 J 1 9 / 0 0
B 8 1 B 1 / 0 0 - 7 / 0 4
B 8 1 C 1 / 0 0 - 9 9 / 0 0
B 0 1 J 2 / 0 6
B 0 1 J 1 3 / 0 2 - 1 3 / 2 2