

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2012 年 1 月 19 日(19.01.2012)

PCT

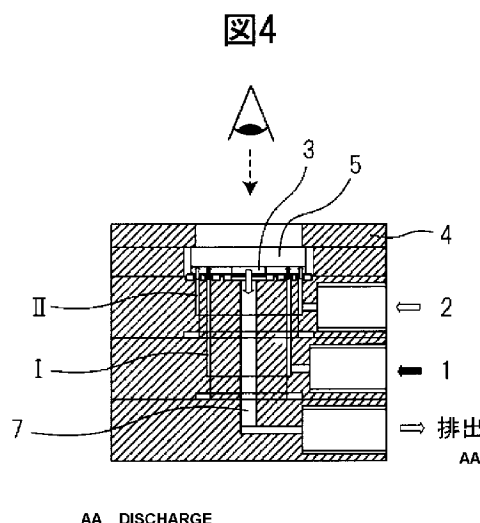
(10) 国際公開番号
WO 2012/008497 A1

- (51) 国際特許分類:
B01F 3/08 (2006.01) *B01J 13/00* (2006.01)
B01F 5/00 (2006.01) *B01J 19/00* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2011/066004
- (22) 国際出願日: 2011 年 7 月 13 日(13.07.2011)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2010-158988 2010 年 7 月 13 日(13.07.2010) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 国立大学法人東京工業大学(Tokyo Institute of Technology) [JP/JP]; 〒1528550 東京都目黒区大岡山 2-1 2-1 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 西迫 貴志 (NISISAKO, Takasi) [JP/JP]; 〒2268503 神奈川県横浜市長津田町 4 2 5 9 国立大学法人東京工業大学内 Kanagawa (JP).
- (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 3 7 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, 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, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, 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, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: APPARATUS FOR PRODUCING MICRO LIQUID DROPS

(54) 発明の名称: 微小液滴の製造装置

[図4]



(57) Abstract: The present invention provides an apparatus for producing micro liquid drops through fine channels which can produce a large amount of micro liquid drops at low costs in an efficient manner. The apparatus for producing micro liquid drops according to the present invention includes a fine channel substrate and a holder for holding the fine channel substrate. The fine channel substrate has a micro liquid drop discharge outlet formed at the center thereof; a plurality of micro liquid drop producing sections which are connected to the micro liquid drop discharge outlet via the fine channels and disposed on the respective circumference of M circles or polygons arranged around the micro liquid drop discharge outlet; first-liquid drawing inlets which are disposed on the circumference of a circle or polygon arranged around the micro liquid drop discharge outlet; up-to-Nth-liquid drawing inlets (N is an integer equal to two or greater, $M \leq N-1$) which are disposed on the respective circumference of circles or polygons arranged sequentially outward; and the fine channels through which the first- to Nth-liquids are supplied to the plurality of micro liquid drop producing sections. The holder for holding the fine channel substrate has a multi-pipe structure which includes N annular channels for distributing an equal flow of the first- to Nth-

liquids to the drawing inlet for each liquid in the fine channel substrate.

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2012/008497 A1



本発明は、微小液滴をより低コストで、効率的に、しかも大量生産することができる微細流路を用いた微小液滴の製造装置を提供する。本発明の微小液滴の製造装置は、微細流路基板と微細流路基板保持用ホルダーを備え、微細流路基板が、中央部に形成される微小液滴の排出口と、この微小液滴の排出口に微細流路によって接続され、この微小液滴の排出口を中心としたM個の円形または多角形のそれぞれの周上に複数配置される微小液滴生成部と、微小液滴の排出口を中心とした円形または多角形の周上に配置される第1の液体の導入口と、さらにその外側の円形または多角形の周上に順次配置される第N（ただしNは2以上の整数、 $M \leq N - 1$ ）までの液体の導入口と、複数の微小液滴の生成部に第1～第Nの液体を供給する微細流路を有し、微細流路基板保持用ホルダーが、第1～第Nの液体を微細流路基板の各液体の導入口に均等に流量配分するためのN個の環状流路を有する多重管構造を有する。

明 細 書

発明の名称：微小液滴の製造装置

技術分野

[0001] 本発明は微小液滴の製造装置に関し、さらに詳しくは微細流路を用いた、単分散性に優れる微小液滴（エマルション）の製造装置に関する。

背景技術

[0002] 本発明者らは、サイズの均一性（単分散性）に優れた微小液滴（エマルション）の生成手法として、微細流路の交差形状を利用したエマルションの生成手法を開発している（W002/068104）。

[0003] この技術により、均一サイズのエマルションを生成することができ、またエマルションの液滴径や生成速度を流路内の流れの速さを操作することで柔軟に制御できるようになった。そして、この技術は、多相エマルションの生成（特開2004-237177号公報）、球状固体微粒子の調製（特開2004-059802号公報、特開2004-067953号公報）、着色固体微粒子の調製（特開2004-197083号公報）などに応用されている。

[0004] しかしながら、上記の技術には、1つの微細流路交差構造では液滴を生成できる流量に上限があり、処理できる量が少ないという問題がある。この問題を解決するために、微細流路を多数並列化させた装置の開発例がいくつか報告されている。例えば、（a）分散相分配用微細流路の層、（a）連続相液体分配用微細流路の層および（c）液滴生成用Y字微細流路の層、の計3層を貼り合わせた微細流路基板が報告されている（特開2004-243308号公報）。

[0005] 一方、本発明者らは、液滴生成用の微細流路の交差形状を多数並べた微細流路基板と各微細流路への液体の分配を制御するための階層構造を備えた微細流路基板保持用ホルダーから成る装置を開発している（W02007/026564, Lab Chip, 2008, 8, 287-293）。

[0006] しかしながら、上記の微小液滴の製造装置では、微細流路基板の各流路に

基板外部から分散相および連続相を供給するための複数の導入口（液体供給口）に対応して、微細流路基板保持用ホルダーにも複数の液体供給経路を設ける必要がある。この構造は以下のような問題を有する。

[0007] まず、微細流路基板に並列化させる流路の数の増大に伴い、微細流路基板の液体供給口の数も増加させる必要があるが、それに応じて、微細流路基板保持用ホルダーの各階層にも対応する位置に多数の液体供給経路を設ける必要がある。また、微細流路基板により密に流路を並べて単位面積あたりの流路数を増加させることが基板面積の有効利用の観点から望ましいが、これには微細流路基板に加工する液体供給口のサイズ、および対応する微細流路基板保持用ホルダーの液体供給経路の穴サイズをより小さくする必要がある。通常、微細流路基板保持用ホルダーの作製は機械加工によって行うが、多数の微細穴の加工は技術的に困難であり、高コストにつながる。また、微細流路基板保持用ホルダーに密に微細穴加工を行った場合には、縦穴の隙間を通る、各階層の側面からの分散相あるいは連続相の供給口の加工が困難となる。

[0008] また、1つの微細流路基板保持用ホルダーは、液体供給口の配置が異なる微細流路基板に対して用いることができず、汎用性に欠けるのが難点である。

先行技術文献

特許文献

[0009] 特許文献1：W002/068104

特許文献2：特開2004-237177号公報

特許文献3：特開2004-059802号公報

特許文献4：特開2004-067953号公報

特許文献5：特開2004-197083号公報

特許文献6：特開2004-243308号公報

特許文献7：W02007/026564

非特許文献

[0010] 非特許文献1: Lab Chip, 2008, 8, 287-293

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0011] 本発明は、上記状況に鑑みて、微小液滴をより低コストで、効率的に、しかも大量生産することができる微細流路を用いた微小液滴の製造装置を提供することを目的とする。さらに、本発明の目的は、得られる微小液滴を硬化させて微粒子を得ることである。

課題を解決するための手段

[0012] 本願発明は、上記の課題を解決するために以下の発明を提供する。

(1) 微細流路を用いた微小液滴の製造装置において、該装置が微細流路基板と微細流路基板保持用ホルダーを備え、微細流路基板が、中央部に形成される微小液滴の排出口と、この微小液滴の排出口に微細流路によって接続され、この微小液滴の排出口を中心とした M 個 (M は1以上の整数)の円形または多角形のそれぞれの周上に複数配置される、内側から第1～第 M の円形または多角形の周上の微小液滴生成部と、前記微小液滴の排出口を中心とした円形または多角形の周上に配置される第1の液体の導入口と、さらにその外側の円形または多角形の周上に順次配置される第 N (ただし N は2以上の整数、 $M \leq N - 1$) までの液体の導入口と、前記複数の微小液滴の生成部に前記第1～第 N の液体を供給する微細流路を有し、微細流路基板保持用ホルダーが、微小液滴の排出口を中心軸とし、前記第1～第 N の液体を微細流路基板の各液体の導入口に均等に流量配分するための N 個の円環状または多角環状流路を有する多重管構造を有することを特徴とする微小液滴の製造装置。

(2) $N = 2$ (このとき $M = 1$) であり、且つ第1の液体が分散相、第2の液体が連続相である上記(1)に記載の微小液滴の製造装置。

(3) 複数の微小液滴の生成部は、連続相液体に対して両側から分散相液体が交互に合流する上記(2)に記載の微小液滴の製造装置。

(4) 微細流路構造体保持用ホルダーが、微細流路基板の下部に配置され

る、連続相のホルダーへの導入口を備えた第3部品と、分散相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第3部品と組み合わせることで連続相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第2部品と、前記第2部品と組み合わせることで分散相を微細流路基板に供給するための円環状経路を形成し且つ中央に微小液滴の微細流路基板からの排出口を有する円筒を備える第1部品を具備する上記(2)または(3)に記載の微小液滴の製造装置。

(5) $N = 2$ (このとき $M = 1$) であり、且つ第1の液体が連続相、第2の液体が分散相である上記(1)に記載の微小液滴の製造装置。

(6) 複数の微小液滴の生成部は、前記分散相に対して両側から連続相が合流する上記(5)に記載の微小液滴の製造装置。

(7) 微細流路構造体保持用ホルダーが、前記微細流路基板の下部に配置される、分散相のホルダーへの導入口を備えた第3部品と、連続相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第3部品と組み合わせることで分散相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第2部品と、生成液滴のホルダーからの排出口を備え、且つ前記第2部品と組み合わせることで連続相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成し、且つ中央に微小液滴の微細流路基板からの排出口を有する円筒を備える第1部品を具備する上記(5)または(6)に記載の微小液滴の製造装置。

(8) $N = 3$ であり、且つ第1の液体が第1分散相であり、第2の液体が第2分散相、第3の液体が連続相であり、生成液滴が第1分散相と第2分散相から構成される上記(1)に記載の微小液滴の製造装置。

(9) $N = 3$ であり、且つ第1の液体が連続相であり、第2の液体が第1分散相、第3の液体が第2分散相であり、生成液滴が第1分散相と第2分散相から構成される上記(1)に記載の微小液滴の製造装置。

(10) $M = 2$ であり、生成液滴が、第1分散相を最内相、第2分散相を中間相とするダブルエマルションである上記(9)に記載の微小液滴の製造

装置。

(11) 複数の最内相液滴の生成部(第2微小液滴生成部)は、前記中間相に対して両側から最内相が交互に合流し、前記複数の中間相液滴の生成部(第1微小液滴生成部)は、最内相液滴を含む中間相に対して両側から連続相が合流する上記(10)に記載の微小液滴の製造装置。

(12) $M=2$ であり、生成液滴が、第1分散相を中間相、第2分散相を最内相とするダブルエマルジョンである上記(9)に記載の微小液滴の製造装置。

(13) 複数の最内相液滴の生成部(第2微小液滴生成部)は、前記最内相に対して両側から中間相が合流し、前記複数の中間相液滴の生成部(第1微小液滴生成部)は、前記最内相液滴を含む中間相に対して両側から連続相が合流する上記(12)に記載の微小液滴の製造装置。

(14) 微細流路構造体保持用ホルダーが、前記微細流路基板の下部に配置される、第2分散相のホルダーへの導入口を備えた第4部品と、第1分散相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第4部品と組み合わせることで第2分散相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第3部品と、連続相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第3部品と組み合わせることで第1分散相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第2部品と、生成液滴のホルダーからの排出口を備え、且つ前記第2部品と組み合わせることで連続相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成し、且つ中央に微小液滴の微細流路基板からの排出口を有する円筒または多角筒を備える第1部品を具備する上記(9)～(13)のいずれかに記載の微小液滴の製造装置。

(15) $N=4$ であり、且つ第1の液体が連続相であり、第2の液体が第1分散相、第3の液体が第2分散相、第4の液体が第3分散相であり、生成液滴が第1分散相、第2分散相、および第3分散相の三相から構成される上記(1)に記載の微小液滴の製造装置。

(16) $M=3$ であり、生成液滴が第1分散相を第1中間相(連続相と接

する相)、第2分散相を第2中間相(第1中間相の内側に位置する相)、第3分散相を最内相とするトリプルエマルションである上記(15)に記載の微小液滴の製造装置。

(17) 複数の最内相液滴の生成部(第3微小液滴生成部)は、最内相に対して両側から第2中間相が合流し、複数の第1中間相液滴の生成部(第2微小液滴生成部)は、前記最内相液滴を含む第1中間相に対して両側から第1中間相が合流し、前記複数の第2中間相液滴の生成部(第1微小液滴生成部)は、前記最内相液滴を含む第1中間相液滴を内包する第2中間相に対して両側から連続相が合流する上記(16)に記載の微小液滴の製造装置。

(18) $M=3$ であり、生成液滴が第1分散相を第1中間相、第2分散相を最内相、および第3分散相を第2中間相とするトリプルエマルションである上記(15)に記載の微小液滴の製造装置。

(19) 複数の最内相液滴の生成部(第3微小液滴生成部)は、第2中間相に対して両側から交互に最内相が合流し、複数の第1中間相液滴の生成部(第2微小液滴生成部)は、前記最内相液滴を含む第1中間相に対して両側から第1中間相が合流し、前記複数の第2中間相液滴の生成部(第1微小液滴生成部)は、前記最内相液滴を含む第1中間相液滴を内包する第2中間相に対して両側から連続相が合流することを特徴とする上記(18)に記載の微小液滴の製造装置。

(20) 微細流路構造体保持用ホルダーが、前記微細流路基板の下部に配置される、第3分散相のホルダーへの導入口を備えた第5部品と、第2分散相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第5部品と組み合わせることで第3分散相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第4部品と、第1分散相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第4部品と組み合わせることで第2分散相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第3部品と、連続相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第3部品と組み合わせることで第1分散相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第2部品と、生成液滴

のホルダーからの排出口を備え、且つ前記第２部品と組み合わせることで連続相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成し、且つ中央に微小液滴の微細流路基板からの排出口を有する円筒または多角筒を備える第１部品を具備する上記（１５）～（１９）のいずれかに記載の微小液滴の製造装置。

（２１）微細流路を用いた微小液滴の製造装置において、該装置が微細流路基板と微細流路基板保持用ホルダーを備え、微細流路基板が、一列に形成される微小液滴の複数の排出口と、この微小液滴の排出口に微細流路によって接続され、この微小液滴の排出口に平行に一列に複数配置される微小液滴生成部と、前記微小液滴の排出口に平行に一列に配置される第１の液体の複数の導入口と、さらにその外側に同様に配置される第２の液体の複数の導入口と、前記複数の微小液滴の生成部に前記第１および第２の液体を供給する微細流路を有し、微細流路基板保持用ホルダーが、該微小液滴の排出口の列ならびに該第１および第２の液体の導入口の列に対応するスリット部を形成してなり、微小液滴の排出口を有する排出層、ならびに第１および第２の液体の各導入口を有する第１液体導入層および第２液体導入層が、第１および第２の液体を微細流路基板の各液体の導入口に均等に流量配分するように階層構造を有することを特徴とする微小液滴の製造装置。

発明の効果

[0013] 本発明によれば、微細孔加工を必要としないで、チップの孔、流路間隔を自由に設定できるので、微小液滴をより低コストで、効率的に、しかも大量生産することができる微細流路を用いた微小液滴およびこれから得られる微粒子、の製造装置を提供し得る。

図面の簡単な説明

[0014] [図１]本発明の１例を示す微小液滴の製造装置の微細流路構造体（チップ）の上面図。

[図２]微細流路における微小液滴生成の１例を示す模式部分拡大図。

[図３]本発明の微小液滴の製造装置の十字流路における微小液滴生成の模式図

。

[図4]本発明の微小液滴の製造装置の微細流路構造体保持用ホルダーの断面図

。

[図5(a)]本発明の微細流路構造体保持用ホルダーの分解図（断面図）。

[図5(b)]本発明の微細流路構造体保持用ホルダーへの微細流路構造体（チップ）のセットの手順を示す。

[図5(c)]上記（b）により位置合わせ部品、微細流路構造体（チップ）および窓付きカバーをセットする直前の状態を示す。

[図6]本発明の1例を示す微小液滴の製造装置の微細流路構造体（チップ）の上面図。

[図7]本発明における微小液滴生成の1例の模式図を示す。

[図8]本発明の1例を示す微小液滴の製造装置の微細流路構造体（チップ）の上面図。

[図9]微小液滴が生成される様子を示す図。

[図10]微小液滴が生成される様子を示す図。

[図11]本発明のもう1つの1例を示す微小液滴の製造装置の微細流路構造体（チップ）および微細流路構造体保持用ホルダーの上面図（a）および側面図（b）。

[図12]図11の微小液滴の製造装置の微細流路構造体（チップ）の1例を示す上面図。

[図13]図12の微小液滴の製造装置の微細流路構造体保持用ホルダーの1例を示す上面図。

[図14]本発明の微小液滴の製造装置の微細流路構造体（チップ）のもう1つの1例を示す上面図。

[図15]図14に示す微細流路構造体（チップ）をステンレス（SUS 304）製のホルダーにセットする手順を示す。

[図16]図14のA部の拡大図。

[図17]図14のB部の拡大図。

発明を実施するための形態

[0015] 本発明の第1の態様において、微小液滴の製造装置は、微細流路基板と微細流路基板保持用ホルダーを備え、その微細流路基板は、中央部に形成される微小液滴の排出口と、この微小液滴の排出口に微細流路によって接続され、この微小液滴の排出口を中心としたM個（Mは1以上の整数）の円形または多角形のそれぞれの周上に複数配置される、内側から第1～第Mの円形または多角形の周上の微小液滴生成部と、前記微小液滴の排出口を中心とした円形または多角形の周上に配置される第1の液体の導入口と、さらにその外側の円形または多角形の周上に順次配置される第N（ただしNは2以上の整数、 $M \leq N - 1$ ）までの液体の導入口と、前記複数の微小液滴の生成部に前記第1～第Nの液体を供給する微細流路を有する。

[0016] 一方、微細流路基板保持用ホルダーは、微小液滴の排出口を中心軸とし、前記第1～第Nの液体を微細流路基板の各液体の導入口に均等に流量配分するためのN個の円環状または多角環状流路を有する多重管構造を有する。整数Nは、好適には2～5である。

[0017] 本発明の第2の態様において、上記の第1の態様の微小液滴の製造装置は、 $N = 2$ （このとき $M = 1$ ）であり、かつ第1の液体が分散相、第2の液体が連続相である。図1は、本発明の第2の態様の微小液滴の製造装置の微細流路構造体（チップ）の1例を示す上面図である（1は分散相、2は連続相、3は排出口）。図2は、微細流路における微小液滴生成の1例を示す模式部分拡大図であり、1は分散相、2は連続相であり、連続相液体と分散相液体が合流した後に、微小液滴が微小液滴生成部で生成されている。図2において、211、212は連続相液体の送出口、261、262は送出口211、212から送出される連続相液体の分岐部、311～314は分岐部261、262で分岐される連続相液体の微細流路を示す。221～224は分散相液体の送出口、271～274は送出口221～224から送出される分散相液体の分岐部を示し、分散相液体の分岐部271～274においては、分岐される分散相液体の微細流路321～328が分岐して

形成される。

[0018] さらに、本発明の第3の態様において、上記の第2の態様の微小液滴の製造装置は、複数の微小液滴の生成部は、連続相液体に対して両側から分散相液体が交互に合流する。図3は、本発明の第3の態様において、微小液滴の製造装置の十字流路における微小液滴生成の1例の模式図を示し、1は分散相、2は連続相である。

[0019] さらに、本発明の第4の態様において、上記の第2の態様の微小液滴の製造装置は、微細流路構造体保持用ホルダーが、微細流路基板の下部に配置される、連続相のホルダーへの導入口を備えた第3部品と、分散相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第3部品と組み合わせることで連続相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第2部品と、前記第2部品と組み合わせることで分散相を微細流路基板に供給するための円環状経路を形成し且つ中央に微小液滴の微細流路基板からの排出口を有する円筒を備える第1部品を具備する。図4は、本発明の微小液滴の製造装置の微細流路御構造体保持用ホルダーの断面図、そして図5(a)～図5(c)は本発明の微細流路構造体保持用ホルダーの分解図を示す。

[0020] 本発明の第5の態様において、上記の第1の態様の微小液滴の製造装置は、 $N=2$ （このとき $M=1$ ）であり、且つ第1の液体が連続相、第2の液体が分散相である。これは、図1において、分散相と連続相を交換した態様である。

[0021] 本発明の第6の態様において、上記の第5の態様の微小液滴の製造装置は、複数の微小液滴の生成部が、前記分散相に対して両側から連続相が合流する。これは、図3において、分散相と連続相を交換した態様である。

[0022] 本発明の第7の態様において、上記の第5の態様の微小液滴の製造装置は、微細流路構造体保持用ホルダーが、前記微細流路基板の下部に配置される、分散相のホルダーへの導入口を備えた第3部品と、連続相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第3部品と組み合わせることで分散相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第2部品と、生成

液滴のホルダーからの排出口を備え、且つ前記第 2 部品と組み合わせることで連続相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成し、且つ中央に微小液滴の微細流路基板からの排出口を有する円筒を備える第 1 部品を具備する。これは、図 4 および図 5 (a) ~ 図 5 (c) において、分散相と連続相を交換した態様である。

[0023] 本発明の第 8 の態様において、上記の第 1 の態様の微小液滴の製造装置は、 $N = 3$ であり、かつ第 1 の液体が連続相であり、第 2 の液体が第 1 分散相、第 3 の液体が第 2 分散相であり、生成液滴が第 1 分散相と第 2 分散相から構成される。

[0024] 本発明の第 9 の態様において、上記の第 8 の態様の微小液滴の製造装置は、 $M = 2$ であり、生成液滴が、第 1 分散相を最内相、第 2 分散相を中間相とするダブルエマルジョンである。図 6 は、本発明の第 9 の態様の 1 例を示す微小液滴の製造装置の微細流路構造体（チップ）の上面図である。

[0025] 本発明の第 10 の態様において、上記の第 9 の態様の微小液滴の製造装置は、複数の最内相液滴の生成部（第 2 微小液滴生成部）が、前記中間相に対して両側から最内相が交互に合流し、前記複数の中間相液滴の生成部（第 1 微小液滴生成部）は、最内相液滴を含む中間相に対して両側から連続相が合流する。図 7 は、この態様における微小液滴生成の模式図を示す。

[0026] 本発明の第 11 の態様において、上記の第 8 の態様の微小液滴の製造装置は、 $M = 2$ であり、生成液滴が、第 1 分散相を中間相、第 2 分散相を最内相とするダブルエマルジョンである。これは、図 6 において、第 1 分散相、第 2 分散相の位置を交換した場合にあたる。

[0027] 本発明の第 12 の態様において、上記の第 11 の態様の微小液滴の製造装置は、複数の最内相液滴の生成部（第 2 微小液滴生成部）が、前記最内相に対して両側から中間相が合流し、前記複数の中間相液滴の生成部（第 1 微小液滴生成部）は、前記最内相液滴を含む中間相に対して両側から連続相が合流する。

[0028] 本発明の第 13 の態様において、上記の第 8 ~ 12 の態様の微小液滴の製

造装置は、微細流路構造体保持用ホルダーが、前記微細流路基板の下部に配置される、第2分散相のホルダーへの導入口を備えた第4部品；第1分散相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第4部品と組み合わせることで第2分散相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第3部品；連続相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第3部品と組み合わせることで第1分散相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第2部品；ならびに生成液滴のホルダーからの排出口を備え、且つ前記第2部品と組み合わせることで連続相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成し、且つ中央に微小液滴の微細流路基板からの排出口を有する円筒または多角筒を備える第1部品、を具備する。

[0029] 本発明の第14の態様において、上記の第1の態様の微小液滴の製造装置は、 $N = 4$ であり、且つ第1の液体が連続相であり、第2の液体が第1分散相、第3の液体が第2分散相、第4の液体が第3分散相であり、生成液滴が第1分散相、第2分散相、および第3分散相の三相から構成される。

[0030] 本発明の第15の態様において、上記の第14の態様の微小液滴の製造装置は、 $M = 3$ であり、生成液滴が第1分散相を第1中間相（連続相と接する相）、第2分散相を第2中間相（第1中間相の内側に位置する相）、第3分散相を最内相とするトリプルエマルジョンである。図8は、本発明の第15の態様の1例を示す微小液滴の製造装置の微細流路構造体（チップ）の上面図である。

[0031] 本発明の第16の態様において、上記の第15の態様の微小液滴の製造装置は、複数の最内相液滴の生成部（第3微小液滴生成部）は、最内相に対して両側から第2中間相が合流し、複数の第1中間相液滴の生成部（第2微小液滴生成部）は、前記最内相液滴を含む第1中間相に対して両側から第1中間相が合流し、前記複数の第2中間相液滴の生成部（第1微小液滴生成部）は、前記最内相液滴を含む第1中間相液滴を内包する第2中間相に対して両側から連続相が合流する。

[0032] 本発明の第17の態様において、上記の第14の態様の微小液滴の製造装置は、 $M=3$ であり、生成液滴が第1分散相を第1中間相、第2分散相を最内相、および第3分散相を第2中間相とするトリプルエマルションである。図8は、本発明の第17の態様の1例を示す微小液滴の製造装置の微細流路構造体（チップ）の上面図でもある。

[0033] 本発明の第18の態様において、上記の第17の態様の微小液滴の製造装置は、複数の最内相液滴の生成部（第3微小液滴生成部）が、第2中間相に対して両側から交互に最内相が合流し、複数の第1中間相液滴の生成部（第2微小液滴生成部）は、前記最内相液滴を含む第1中間相に対して両側から第1中間相が合流し、前記複数の第2中間相液滴の生成部（第1微小液滴生成部）は、前記最内相液滴を含む第1中間相液滴を内包する第2中間相に対して両側から連続相が合流する。

[0034] 本発明の第19の態様において、上記の第14～18の態様の微小液滴の製造装置は、微細流路構造体保持用ホルダーが、前記微細流路基板の下部に配置される、第3分散相のホルダーへの導入口を備えた第5部品；第2分散相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第5部品と組み合わせることで第3分散相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第4部品；第1分散相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第4部品と組み合わせることで第2分散相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第3部品；連続相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第3部品と組み合わせることで第1分散相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第2部品；ならびに生成液滴のホルダーからの排出口を備え、且つ前記第2部品と組み合わせることで連続相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成し、且つ中央に微小液滴の微細流路基板からの排出口を有する円筒または多角筒を備える第1部品、を具備する。

[0035] 本発明の第20の態様において、微細流路を用いた微小液滴の製造装置は、該装置が微細流路基板と微細流路基板保持用ホルダーを備え、微細流路基

板が、一列に形成される微小液滴の複数の排出口と、この微小液滴の排出口に微細流路によって接続され、この微小液滴の排出口に平行に一列に複数配置される微小液滴生成部と、前記微小液滴の排出口に平行に一列に配置される第1の液体の複数の導入口と、さらにその外側に同様に配置される第2の液体の複数の導入口と、前記複数の微小液滴の生成部に前記第1および第2の液体を供給する微細流路を有する。一方、微細流路基板保持用ホルダーが、該微小液滴の排出口の列ならびに該第1および第2の液体の導入口の列に対応するスリット部を形成してなり、微小液滴の排出口を有する排出層、ならびに第1および第2の液体の各導入口を有する第1液体導入層および第2液体導入層が、第1および第2の液体を微細流路基板の各液体の導入口に均等に流量配分するように階層構造を有する。この態様においては、微細流路基板と微細流路基板保持用ホルダーは、円周型ではなく、行列型の配置を有するが、円周型と同様な利点を有する。すなわち、微細流路基板の各流路に基板外部から分散相および連続相を供給するための複数の導入口（液体供給口）に対応して、微細流路基板保持用ホルダーにも複数の液体供給流路を設ける必要はない。上記スリット部は、後述するように上記排出口および液体の導入口に接続するように対応して設けられる。後述する図13は、このようなスリット部の例（各スリット部は独立している。）を示すが、たとえば2つのスリット部10および11が端で結合したコの字型等とすることもできる。

[0036] 本発明の微小液滴の製造装置の微細流路構造体（チップ）を、前述の図1により、さらに詳しく説明すると、その微細流路チップには、微小液滴の排出口3を中心として、最も外側に36箇所の連続相液体の導入口を、その内側に72箇所の分散相液体の導入口を、微小液滴の排出口を中心とした同心円上の位置にそれぞれ配置し、連続相液体および分散相液体の分岐流路と、微小液滴が生成される72箇所の十字流路（すなわち144箇所のT字路）からなる微小液滴生成部を最も内側に形成して、微細流路構造体が構成されている。すなわち、周縁部から連続相液体と分散相液体とを十字に交差させ

て、72箇所の十字路（144箇所のT字路）で微小液滴を生成し、その生成された微小液滴は、中心の微小液滴の排出口に導かれ、排出されることになる。

[0037] 次に、本発明の1つの実施例を示す、微細流路を用いた微小液滴の製造装置の、微細流路構造体保持用ホルダーの多重管構造について、前述の図4および図5（a）～図5（c）とともにさらに詳しく説明する。ここでは、窓付カバー4および微細流路基板5の位置合わせ部品6の下部に、微細流路基板の中心に位置する微小液滴の排出口3を中心軸として、排出口7を有する排出層である第1部品7'が設けられ、その排出層7'の円管状の壁を隔てたその外側に分散相供給用の円環状流路を有する分散相1（第1の液体）導入層である第2部品1'が設けられ、さらにその円環状の壁を隔てたその外側に、連続相供給用の円環状流路を有する連続相2（第2の液体）導入層である第3部品2'が設けられるように配置された多重管構造を、複数の円筒部品を互いにはめ合わせる形で設けている。図5（b）に示す手順で部品を組み合わせた状態（図4、ならびに位置合わせ部品6、微細流路構造体（チップ）5および窓付きカバー4をセットする直前の状態を示す図5（c））では、分散相1の液体および連続相2の液体の供給部品の中心に位置する円筒の内壁と、その円筒の内側に位置し、下層部品から伸びている円筒の外壁の間には、円環状のすきまが生じるように設計されており、図4および図5（c）に示されるように上記すきまに形成された分散相流路Iおよび連続相流路IIによって分散相液体あるいは連続相液体が通れるようになっている。分散相液体が流れる円環状流路である分散相流路I、および連続相液体が流れる円環状流路である連続相流路IIは微細流路基板まで達し、微細流路基板上の異なる同心円状に設けられた、分散相液体あるいは連続相液体の導入口に接続するように構成されている。

[0038] このような多重管構造により、微細流路構造体保持用ホルダーに微細穴加工を多数施すことなく、微細流路基板上の分散相液体導入口あるいは連続相液体導入口に、それぞれ均等に流量を分配することが可能となる。これによ

り、より容易かつ低コストに微小液滴製造装置を提供することができる。また、微細流路基板上の液体導入口は、微細流路基板保持用ホルダーの円環状流路に位置が合うよう配置されていれば良く、微細流路基板上の液体導入口の個数は問わない。すなわち、液体導入口が配置されている円とホルダーの円環流路の位置が合えば、1つのホルダーを異なる流路形状および異なる液体導入口個数を有するさまざまな微細流路基板に使用することができ、汎用性の大幅な向上が見込まれる。

[0039] つぎに、図11～13とともに、本発明の第20の態様について、さらに詳細に説明する。図11は、この微細流路構造体（チップ）および微細流路御構造体保持用ホルダーの上面図（a）および側面図（b）を示し、図12は、その微細流路構造体（チップ）の1例を示す上面図、図13は、その微細流路御構造体保持用ホルダーの1例を示す上面図である。

[0040] 図11（b）に示されるように、窓付カバー4および微細流路基板5の位置合わせ部品6の下部に、微細流路基板の中心に位置する微小液滴の排出口を中心軸として、排出口7を有する排出層7'、その排出層7'の上の分散相（第1の液体）1の導入層1'、そしてその上に連続相（第2の液体）2の導入層2'が設けられるように配置されている。図11（b）において、8および9は、それぞれ第1および第2の液体の導入口を示す。図11（a）および図13に示されるように、微細流路基板保持用ホルダーは、図11（b）および図12における、該微小液滴の排出口7の列ならびに該第1および第2の液体の導入口8および9の列に対応するスリット部を形成してなり、上記のように、微小液滴の排出口を有する排出層7'、ならびに第1および第2の液体の各導入口を有する第1導入層および第2液体導入層1'および2'が、第1および第2の液体を微細流路基板の各液体の導入口に均等に流量配分するように階層構造を有する。図13において、10～12は、それぞれ排出口7、第1液体の導入口8、および第2の液体の導入口9および排出口7に対応するスリット部を示す。

[0041] 本発明において、微細流路の分岐構造としては、特に制限されないが、好

適には十字路、T字路もしくはY字路から選ばれる。微細流路の大きさは、目的に応じて決定しうるが、通常 $0.1 \sim 1000 \mu\text{m}$ 程度、好ましくは $10 \sim 500 \mu\text{m}$ 程度から選ばれる。微細流路を形成する材料の材質は、たとえばプラスチック、セラミック、金属等のいずれでもよく、たとえば微細流路の壁面を疎水性とする場合にはアクリル樹脂、シリコン樹脂等が好適であり、一方、親水性にする場合には石英ガラス、シリコン、ホウケイ酸ガラス（たとえば「パイレックス」（商標））等が好適である。微細流路を形成する材料の形状、大きさは目的とする用途等により適宜選定し得、たとえば、加工した流路を有する板状体（たとえば～数センチ角）が挙げられる。

[0042] 本発明方法において、連続相を形成する液体は、有機化合物または水であり、一方分散相を形成する液体は、硬化性液体である。有機化合物としては、有機相としては、特に制限されないが、好適にはデカン、オクタン等のアルカン類、クロロホルム等のハロゲン化炭化水素類、トルエン等の芳香族炭化水素類、オレイン酸等の脂肪酸類等が挙げられる。

[0043] 硬化性液体としては、熱または光等で硬化し得る液体であれば特に制限されない。たとえば、公知の重合性モノマー、オリゴマーまたはポリマーが挙げられ、好適には後述するようなアクリレート系モノマー、スチレン系モノマー、等が挙げられる。第1分散相と第2分散相等の複数の分散相を用いる場合には、後述するように相異なる着色剤を含有し、それらの分散相を構成する硬化性液体は、同一であっても異なってもよい。

[0044] 分散相および連続相の組み合わせは、通常O/W、O/O型、W/O型とすることができる。流路中で、分散相は層流で連続相と合流し、順次球状の微小液滴に変形され、同時または時間差で微小液滴が硬化されて微粒子が形成される。

[0045] 分散相および連続相の流速は、その種類等にもよるが、通常 $1 \mu\text{m} \sim 1000 \text{mL/時間}$ 程度から選ばれる。

[0046] 本発明における分散相は、たとえば第1分散相および第2分散相として、2色に色相を分相させることができ、たとえば一方に、または両方に異なる

着色剤が添加され、必要に応じて帯電または帯磁のための添加剤を用い得る。着色剤としては、無彩色の白および黒、又は有彩色の赤、青、緑、紫、黄等から選ばれる、2色の分相色相を挙げることができる。このような色相を形成させる染顔料としては、特に制限されず、油溶性等の各種染料、または各種の無機・有機顔料等を使用することができる。これらの染料及び顔料は、硬化性成分への分散性、得られる2色性微粒子の用途で所望する色調等に応じて適宜選んで使用することができる。着色剤は、一方の分散相のみに使用することもできる。

[0047] これら着色剤としての染顔料の添加量は、特に限定されるものではないが、通常、硬化成分100重量部当たり、0.1～10重量部程度の範囲で適宜使用される。

[0048] また、本発明において、この2色に分相させた硬化性成分に、帯電付与剤を用いて、互いに異なる正負に帯電する成分で形成させることができる。あるいは、重合性モノマーとして、その官能基又は置換基の種類によって、既に上述する本発明における帯電性は、それぞれ（－）帯電性と（＋）帯電性を示す傾向にあるモノマー種を挙げることができる。たとえば、（－）帯電性の傾向にある重合性モノマーとして、（メタ）アクリル酸フェニル等の（メタ）アクリル酸アリールエステル類、（メタ）アクリル酸グリシジル等のエポキシ基含有重合性化合物類、（メタ）アクリル酸－2－ヒドロキシエチル等のヒドロキシ基含有重合性化合物類、メチルスチレン等のスチレン系モノマー、等が挙げられる。一方、（＋）帯電性の傾向にある重合性モノマーとして、例えば、メタクリルアミド等のアミド基含有ビニル単量体類等が挙げられる。

[0049] また、本発明においては、磁性体粉を分散させることにより、2色相に分相させた微小液滴を、互いに異なる正負に帯磁させることができる。

[0050] 本発明方法により得られる微小液滴は、熱、UV等の光、等により硬化させて微粒子を得ることができる。

本発明において、UV照射下に重合硬化させる場合には、アセトフェノン

類等の光重合開始剤を使用することができ、加熱下に重合硬化させる場合、有機パーオキサイド類等の熱分解型の重合開始剤も使用することができる。

実施例

[0051] 以下に、本発明を実施例により説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

(具体例 1)

図 1 に示すような微細流路チップを、ガラス基板（合成石英）への加工により作製した。ドライエッチングにより基板上に矩形断面を有する微細溝（幅 $100\ \mu\text{m}$ 、深さは全域 $100\ \mu\text{m}$ ）を加工し、 $15\text{mm} \times 15\text{mm}$ に切断した。液体供給口（直径 0.25mm 、 108 箇所）および排出口（直径 4.5mm 、 1 箇所）用に貫通穴加工をほどこした同一面積の別基板と熱溶着による貼り合わせを行い、微細流路チップを形成した。これを機械加工によって作製したステンレス（SUS 304）製のホルダーに図 4 のようにセットして用いた。分散相として 1、6 ヘキサンジオールジアクリレート（新中村化学工業）を、連続相としてポリビニルアルコール（日本合成化学製 GL-03）2 % 水溶液を用いた。送液にはシリンジポンプ（KDS scientific 社、KDS200）を分散相、連続相にそれぞれ 1 台ずつ用いた。分散相の流量を 180mL/hr 、連続相の流量を 270mL/hr として送液を行ったところ、チップ内部の 72 箇所の十字路（ 144 箇所の T 字路）全てにおいて均一なサイズの液滴が規則正しい時間周期で連続生成される様子を図 9 のように観察することができた。得られた液滴の平均径は $95.4\ \mu\text{m}$ 、変動係数は 1.3% であった。

(具体例 2)

分散相の流量を 144mL/hr とする以外は具体例 1 と同様に行ったところ、同様に全ての流路において均一なサイズの液滴が規則正しい時間周期で連続生成される様子を確認することができた（図 10）。得られた液滴の平均径は $95.2\ \mu\text{m}$ 、変動係数は 1.7% であった。

(具体例 3)

具体例 1 と同様にして、図 14 に示すような微細流路チップを形成し、こ

れを機械加工によって作製したステンレス（SUS 304）製のホルダーに図 1 5 に示すようにセットして用い、2 色液滴を生成する T 字路（幅、深さともに $100\ \mu\text{m}$ ）を 40 個配置した。図 1 4 において、10 は微細流路チップ、11～20 は連続相液体の送出口、61～70 は送出口 11～20 から送出される連続相液体の分岐部、111～130 は分岐部 61～70 で分岐される分岐される連続相液体の微細流路を示す。21～40 は第 2 分散相液体の送出口、71～90 は送出口 21～40 から送出される第 2 分散相液体の分岐部、41～60 は第 1 分散相液体の送出口、91～110 は送出口 41～60 から送出される第 1 分散相液体の分岐部を示し、第 2 分散相液体の分岐部 71～90 および第 1 分散相液体の分岐部 91～110 においては、分岐される第 2 分散相液体の微細流路、分岐される第 1 分散相液体の微細流路が、連続相液体の微細流路 111～130 と同様にそれぞれ分岐して形成される。

第 2 分散相としてアクリルモノマー（赤色に着色）、第 1 分散相としてシリコンオイル（無色）および連続相として SDS（ドデシル硫酸ナトリウム）0.3 wt % 水溶液を用いた。第 1 分散相および第 2 分散相の流量を 10 mL/hr、連続相の流量を 40 mL/hr として送液を行ったところ、チップ内部の 40 箇所の T 字路全てにおいて均一なサイズの 2 色液滴が規則正しい時間周期で連続生成されることが観察された（図 1 6 および 1 7）。図 1 6 および 1 7 は、それぞれ図 1 4 の A 部および B 部の拡大図である。

産業上の利用可能性

[0052] 本発明によれば、微小液滴をより低コストで、効率的に、しかも大量生産することができる微細流路を用いた微小液滴、およびこれから得られる微粒子、の製造装置を提供し得る。

符号の説明

[0053] 1 分散相
 2 連続相
 3 排出口

- 4 窓付カバー
- 5 微細流路基板

請求の範囲

- [請求項1] 微細流路を用いた微小液滴の製造装置において、
該装置が微細流路基板と微細流路基板保持用ホルダーを備え、
微細流路基板が、中央部に形成される微小液滴の排出口と、この微小液滴の排出口に微細流路によって接続され、この微小液滴の排出口を中心としたM個（Mは1以上の整数）の円形または多角形のそれぞれの周上に複数配置される、内側から第1～第Mの円形または多角形の周上の微小液滴生成部と、前記微小液滴の排出口を中心とした円形または多角形の周上に配置される第1の液体の導入口と、さらにその外側の円形または多角形の周上に順次配置される第N（ただしNは2以上の整数、 $M \leq N - 1$ ）までの液体の導入口と、前記複数の微小液滴の生成部に前記第1～第Nの液体を供給する微細流路を有し、
微細流路基板保持用ホルダーが、微小液滴の排出口を中心軸とし、前記第1～第Nの液体を微細流路基板の各液体の導入口に均等に流量配分するためのN個の円環状または多角環状流路を有する多重管構造を有することを特徴とする微小液滴の製造装置。
- [請求項2] $N = 2$ （このとき $M = 1$ ）であり、且つ第1の液体が分散相、第2の液体が連続相である請求項1に記載の微小液滴の製造装置。
- [請求項3] 複数の微小液滴の生成部は、連続相液体に対して両側から分散相液体が交互に合流する請求項2に記載の微小液滴の製造装置。
- [請求項4] 微細流路構造体保持用ホルダーが、微細流路基板の下部に配置される、連続相のホルダーへの導入口を備えた第3部品と、分散相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第3部品と組み合わせることで連続相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第2部品と、前記第2部品と組み合わせることで分散相を微細流路基板に供給するための円環状経路を形成し且つ中央に微小液滴の微細流路基板からの排出口を有する円筒を備える第1部品を具備する請求項2または3に記載の微小液滴の製造装置。

- [請求項5] $N = 2$ （このとき $M = 1$ ）であり、且つ第1の液体が連続相、第2の液体が分散相である請求項1に記載の微小液滴の製造装置。
- [請求項6] 複数の微小液滴の生成部は、前記分散相に対して両側から連続相が合流する請求項5に記載の微小液滴の製造装置。
- [請求項7] 微細流路構造体保持用ホルダーが、前記微細流路基板の下部に配置される、分散相のホルダーへの導入口を備えた第3部品と、連続相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第3部品と組み合わせることで分散相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第2部品と、生成液滴のホルダーからの排出口を備え、且つ前記第2部品と組み合わせることで連続相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成し、且つ中央に微小液滴の微細流路基板からの排出口を有する円筒を備える第1部品を具備する請求項5または6に記載の微小液滴の製造装置。
- [請求項8] $N = 3$ であり、且つ第1の液体が第1分散相であり、第2の液体が第2分散相、第3の液体が連続相であり、生成液滴が第1分散相と第2分散相から構成される上記（1）に記載の微小液滴の製造装置。
- [請求項9] $N = 3$ であり、且つ第1の液体が連続相であり、第2の液体が第1分散相、第3の液体が第2分散相であり、生成液滴が第1分散相と第2分散相から構成される請求項1に記載の微小液滴の製造装置。
- [請求項10] $M = 2$ であり、生成液滴が、第1分散相を最内相、第2分散相を中間相とするダブルエマルジョンである請求項9に記載の微小液滴の製造装置。
- [請求項11] 複数の最内相液滴の生成部（第2微小液滴生成部）は、前記中間相に対して両側から最内相が交互に合流し、前記複数の中間相液滴の生成部（第1微小液滴生成部）は、最内相液滴を含む中間相に対して両側から連続相が合流する請求項10に記載の微小液滴の製造装置。
- [請求項12] $M = 2$ であり、生成液滴が、第1分散相を中間相、第2分散相を最内相とするダブルエマルジョンである請求項9に記載の微小液滴の製造装置。

造装置。

[請求項13] 複数の最内相液滴の生成部（第2微小液滴生成部）は、前記最内相に対して両側から中間相が合流し、前記複数の中間相液滴の生成部（第1微小液滴生成部）は、前記最内相液滴を含む中間相に対して両側から連続相が合流する請求項12に記載の微小液滴の製造装置。

[請求項14] 微細流路構造体保持用ホルダーが、
前記微細流路基板の下部に配置される、第2分散相のホルダーへの導入口を備えた第4部品と、

第1分散相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第4部品と組み合わせることで第2分散相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第3部品と、

連続相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第3部品と組み合わせることで第1分散相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第2部品と、

生成液滴のホルダーからの排出口を備え、且つ前記第2部品と組み合わせることで連続相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成し、且つ中央に微小液滴の微細流路基板からの排出口を有する円筒または多角筒を備える第1部品を具備する請求項9～13のいずれかに記載の微小液滴の製造装置。

[請求項15] $N = 4$ であり、且つ第1の液体が連続相であり、第2の液体が第1分散相、第3の液体が第2分散相、第4の液体が第3分散相であり、生成液滴が第1分散相、第2分散相、および第3分散相の三相から構成される請求項1に記載の微小液滴の製造装置。

[請求項16] $M = 3$ であり、生成液滴が第1分散相を第1中間相（連続相と接する相）、第2分散相を第2中間相（第1中間相の内側に位置する相）、第3分散相を最内相とするトリプルエマルションである請求項15に記載の微小液滴の製造装置。

[請求項17] 複数の最内相液滴の生成部（第3微小液滴生成部）は、最内相に対

して両側から第2中間相が合流し、複数の第1中間相液滴の生成部（第2微小液滴生成部）は、前記最内相液滴を含む第1中間相に対して両側から第1中間相が合流し、前記複数の第2中間相液滴の生成部（第1微小液滴生成部）は、前記最内相液滴を含む第1中間相液滴を内包する第2中間相に対して両側から連続相が合流する請求項16に記載の微小液滴の製造装置。

[請求項18] $M=3$ であり、生成液滴が第1分散相を第1中間相、第2分散相を最内相、および第3分散相を第2中間相とするトリプルエマルションである請求項15に記載の微小液滴の製造装置。

[請求項19] 複数の最内相液滴の生成部（第3微小液滴生成部）は、第2中間相に対して両側から交互に最内相が合流し、複数の第1中間相液滴の生成部（第2微小液滴生成部）は、前記最内相液滴を含む第1中間相に対して両側から第1中間相が合流し、

前記複数の第2中間相液滴の生成部（第1微小液滴生成部）は、前記最内相液滴を含む第1中間相液滴を内包する第2中間相に対して両側から連続相が合流することを特徴とする請求項18に記載の微小液滴の製造装置。

[請求項20] 微細流路構造体保持用ホルダーが、
前記微細流路基板の下部に配置される、第3分散相のホルダーへの導入口を備えた第5部品と、

第2分散相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第5部品と組み合わせることで第3分散相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第4部品と、

第1分散相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第4部品と組み合わせることで第2分散相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成する第3部品と、

連続相のホルダーへの導入口を備え、且つ前記第3部品と組み合わせることで第1分散相を微細流路基板に供給するための円環状または

多角環状流路を形成する第2部品と、

生成液滴のホルダーからの排出口を備え、且つ前記第2部品と組み合わせることで連続相を微細流路基板に供給するための円環状または多角環状流路を形成し、且つ中央に微小液滴の微細流路基板からの排出口を有する円筒または多角筒を備える第1部品を具備する請求項15～19のいずれかに記載の微小液滴の製造装置。

[請求項21]

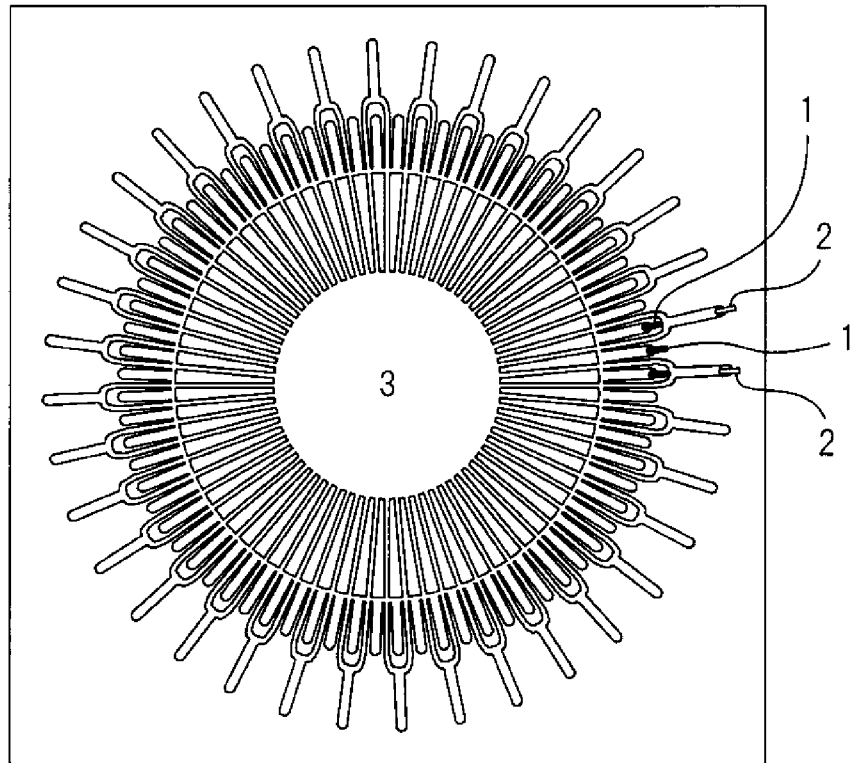
微細流路を用いた微小液滴の製造装置において、該装置が微細流路基板と微細流路基板保持用ホルダーを備え、

微細流路基板が、一列に形成される微小液滴の複数の排出口と、この微小液滴の排出口に微細流路によって接続され、この微小液滴の排出口に平行に一列に複数配置される微小液滴生成部と、前記微小液滴の排出口に平行に一列に配置される第1の液体の複数の導入口と、さらにその外側に同様に配置される第2の液体の複数の導入口と、前記複数の微小液滴の生成部に前記第1および第2の液体を供給する微細流路を有し、

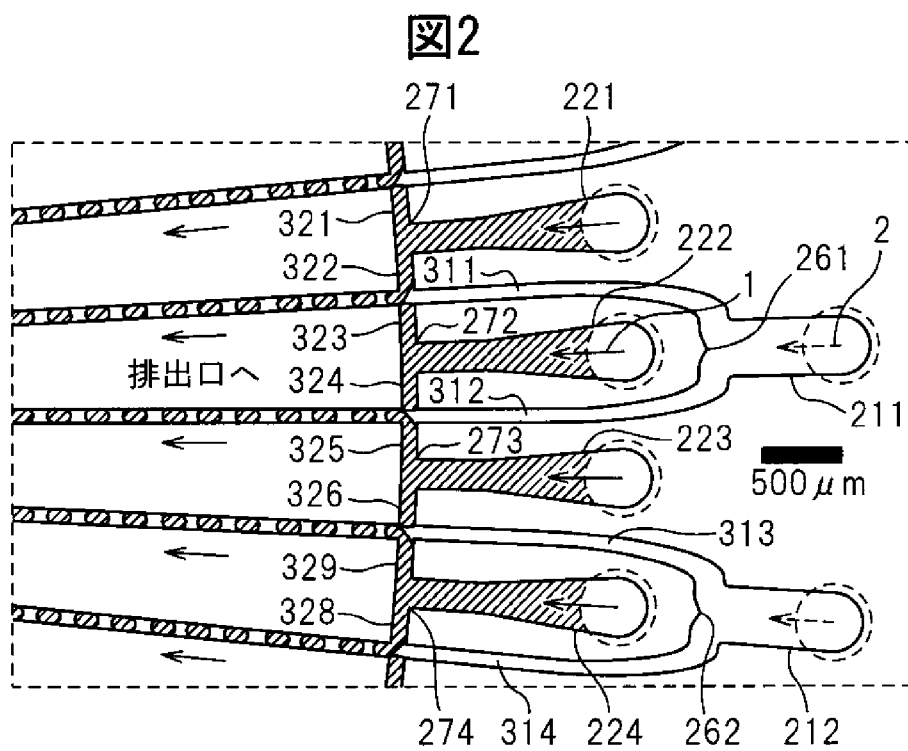
微細流路基板保持用ホルダーが、該微小液滴の排出口の列ならびに該第1および第2の液体の導入口の列に対応するスリット部を形成してなり、微小液滴の排出口を有する排出層、ならびに第1および第2の液体の各導入口を有する第1液体導入層および第2液体導入層が、第1および第2の液体を微細流路基板の各液体の導入口に均等に流量配分するように階層構造を有することを特徴とする微小液滴の製造装置。

[図1]

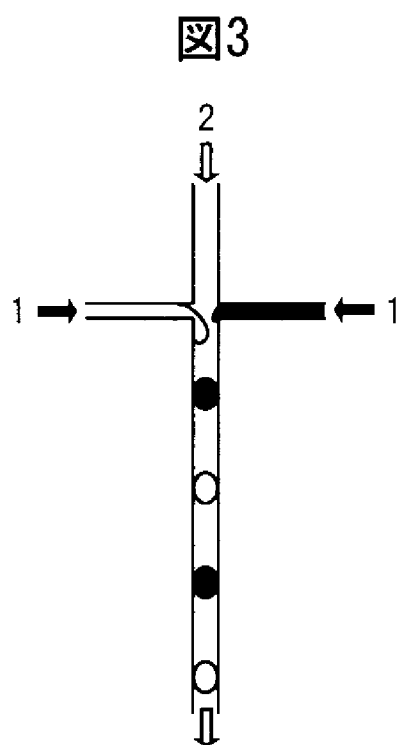
図1



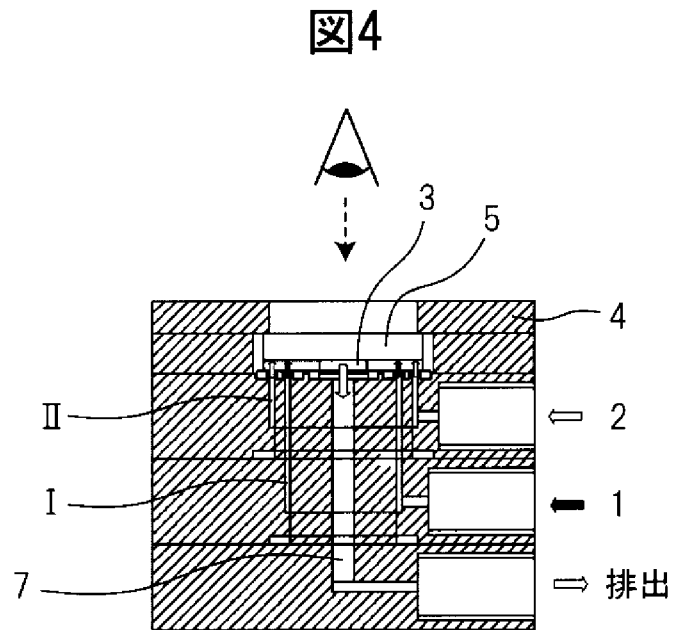
[図2]



[図3]

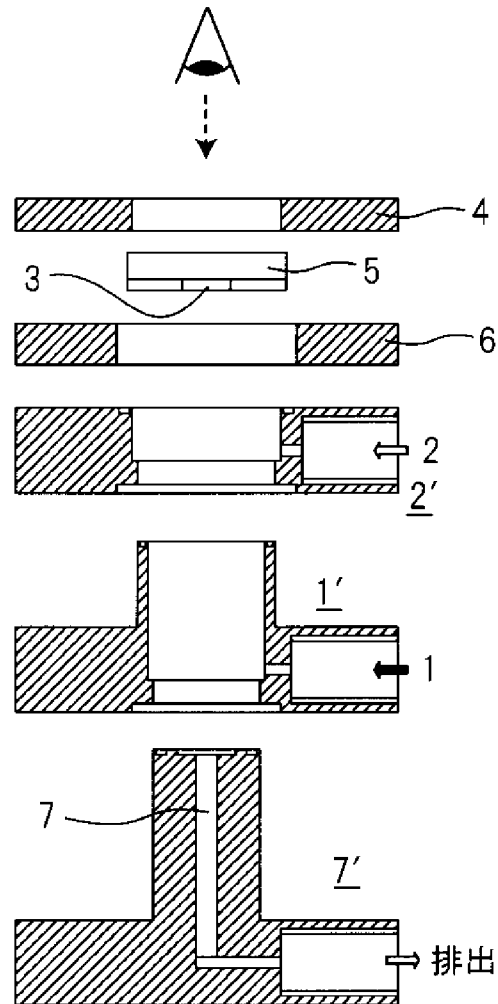


[図4]



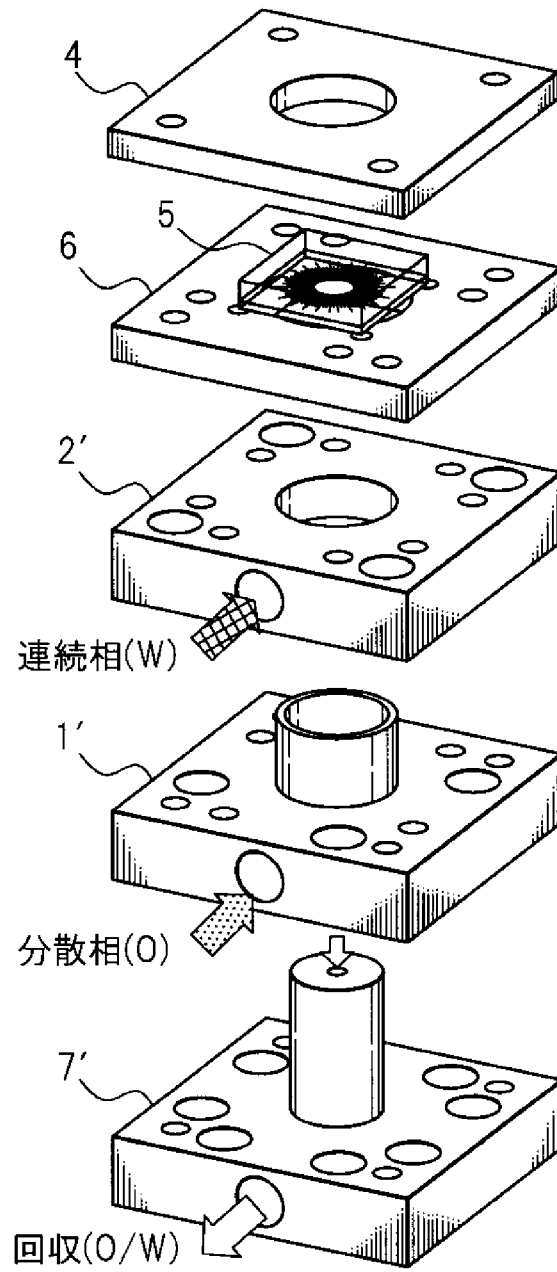
[図5(a)]

図5(a)



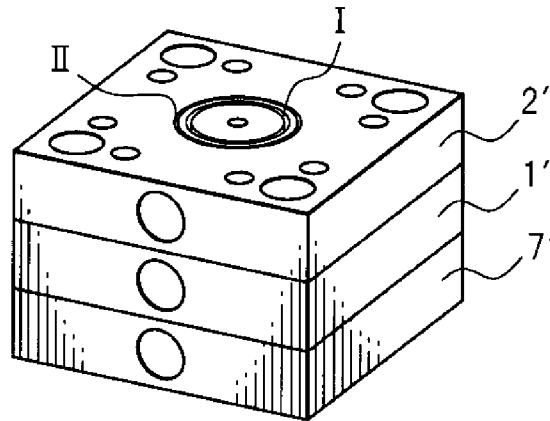
[図5(b)]

図5(b)



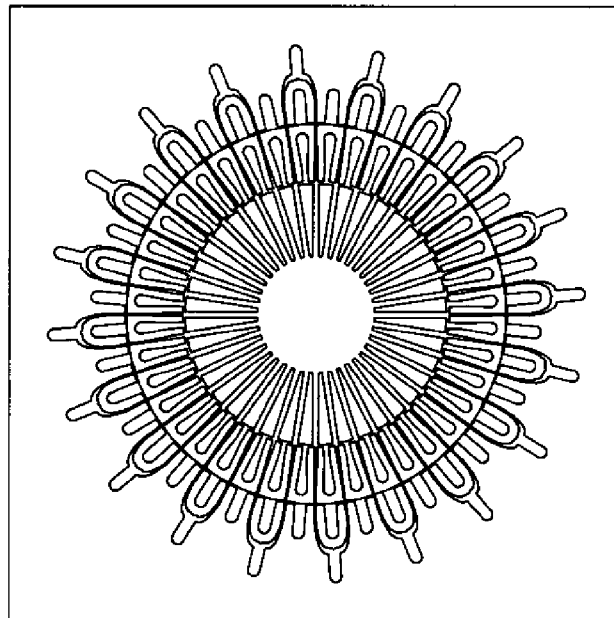
[図5(c)]

図5(c)



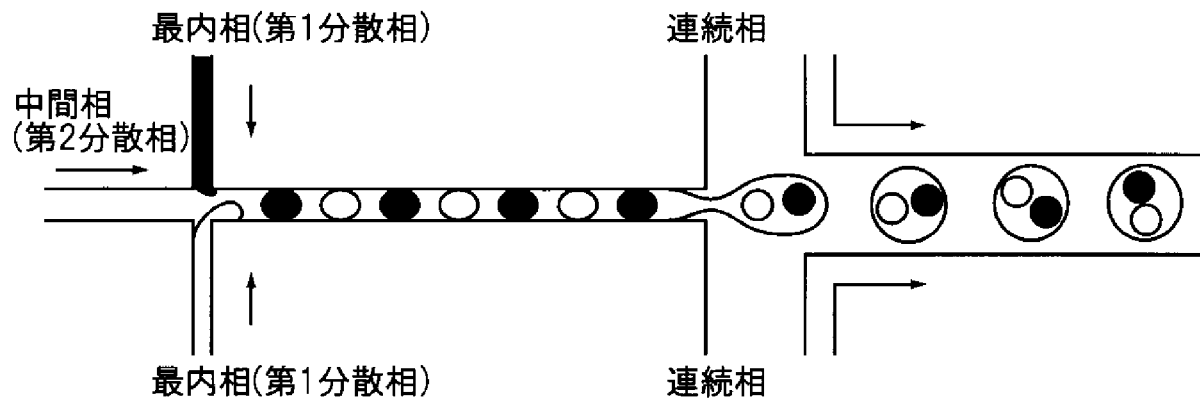
[図6]

図6



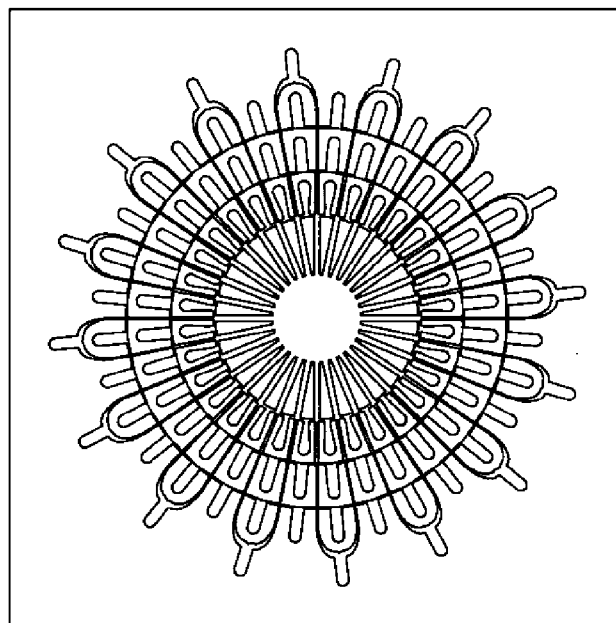
[図7]

図7



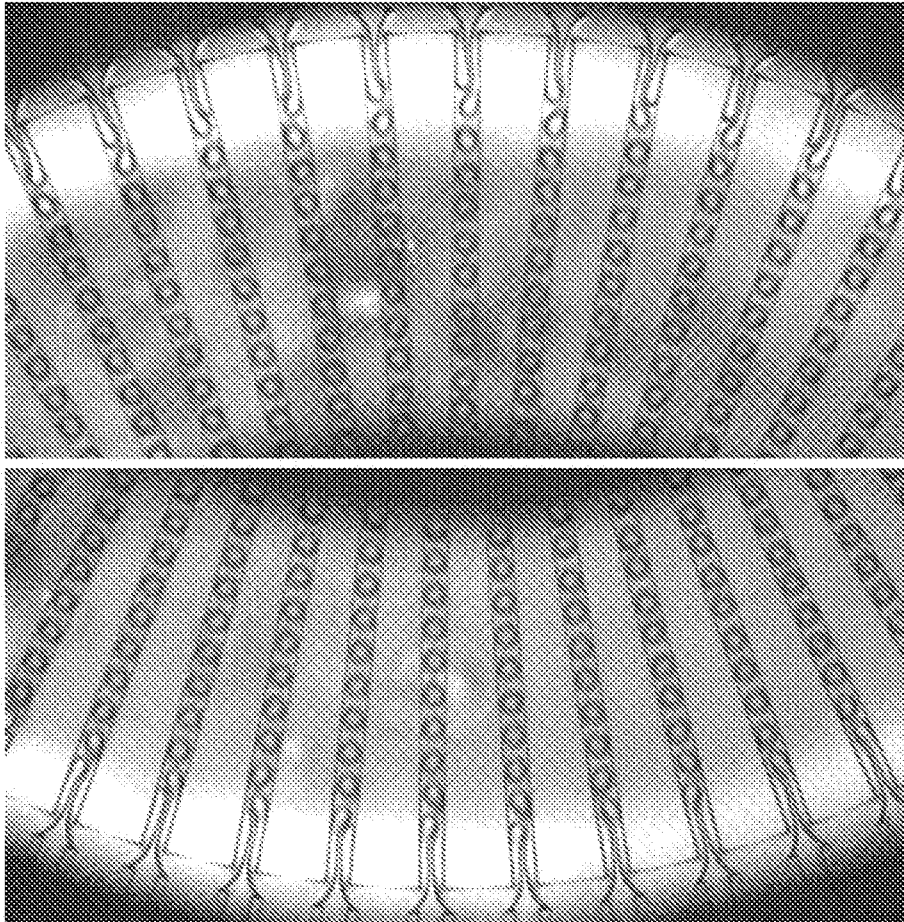
[図8]

図8



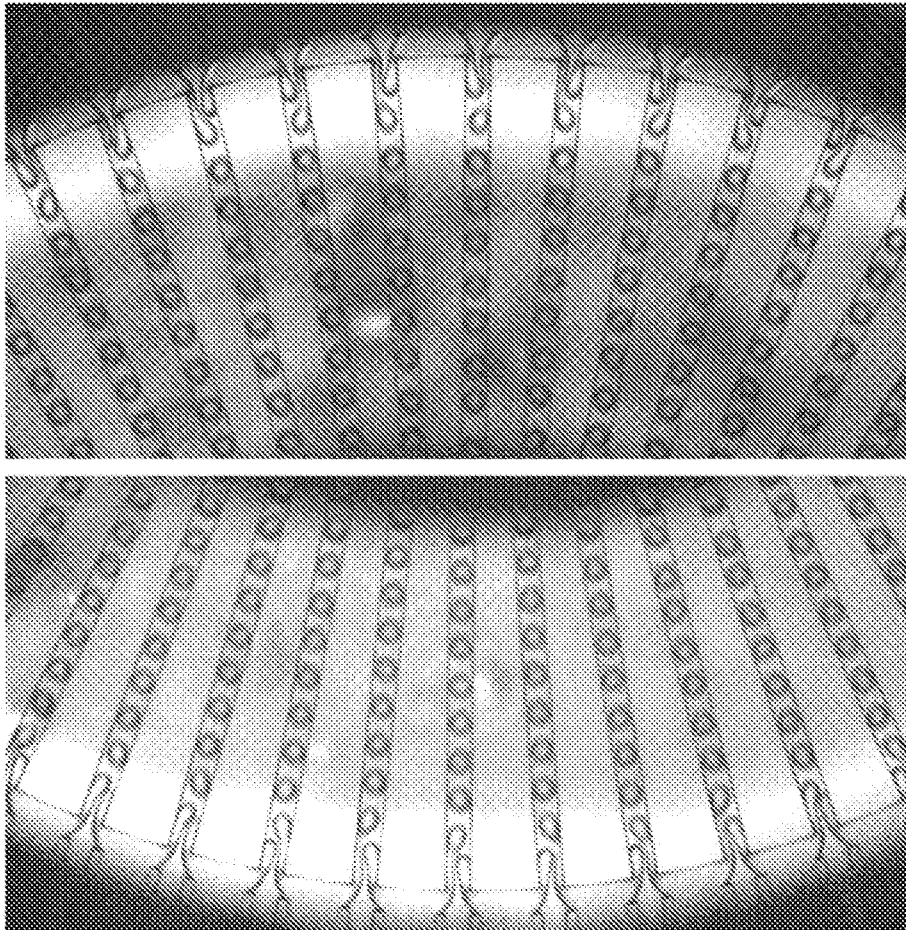
[図9]

図9



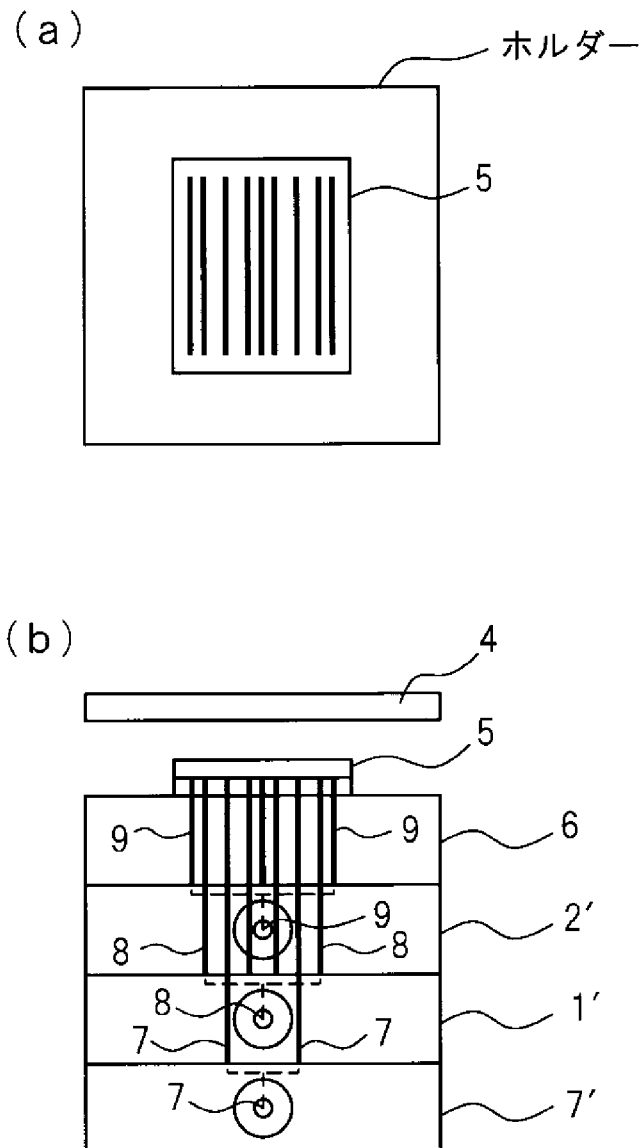
[図10]

図10



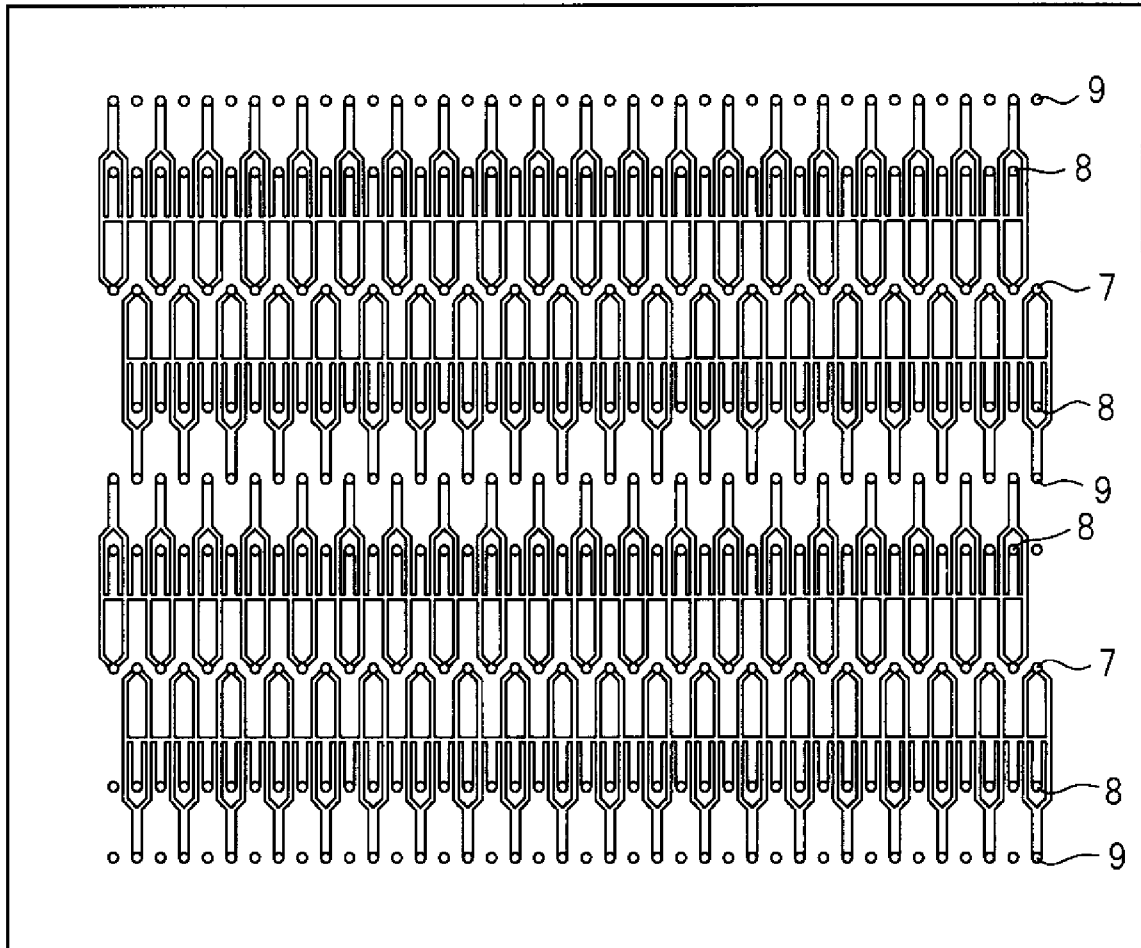
[図11]

図11



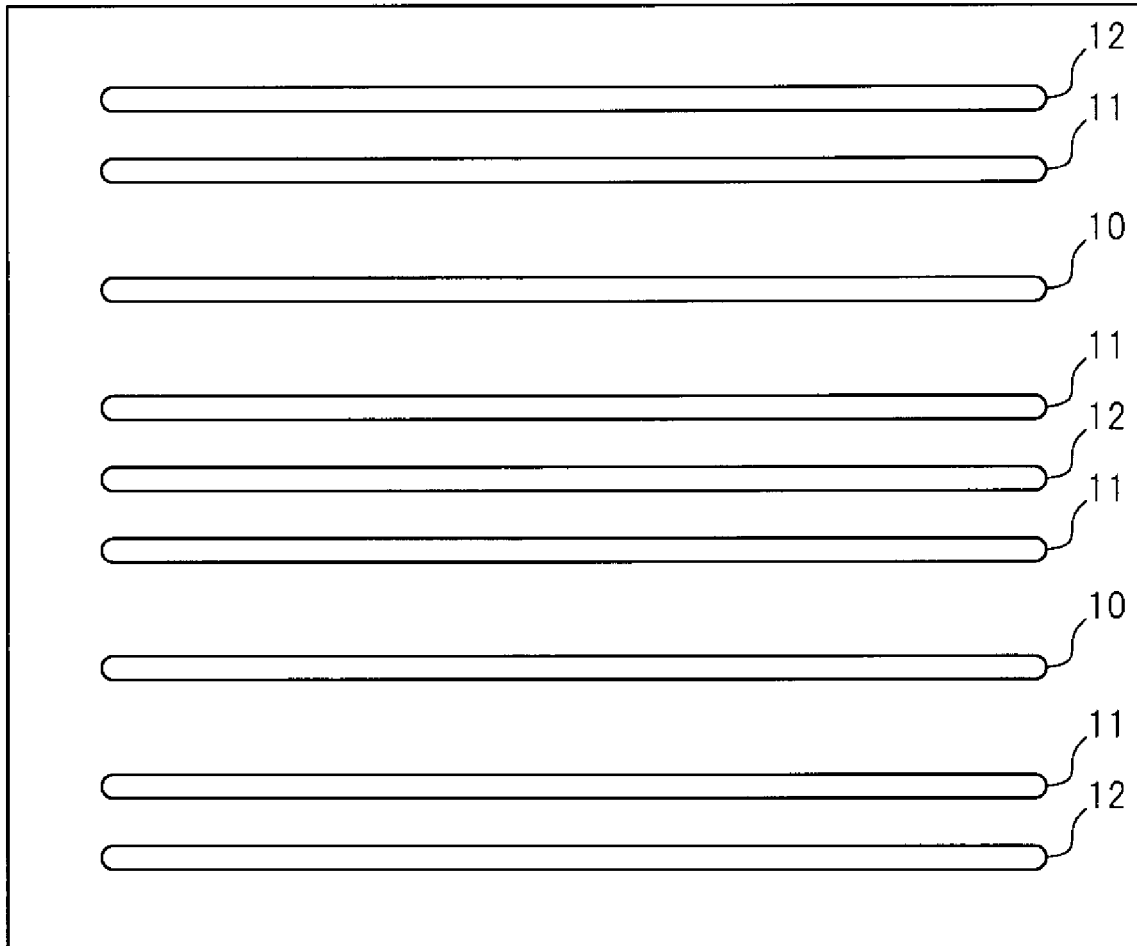
[図12]

図12



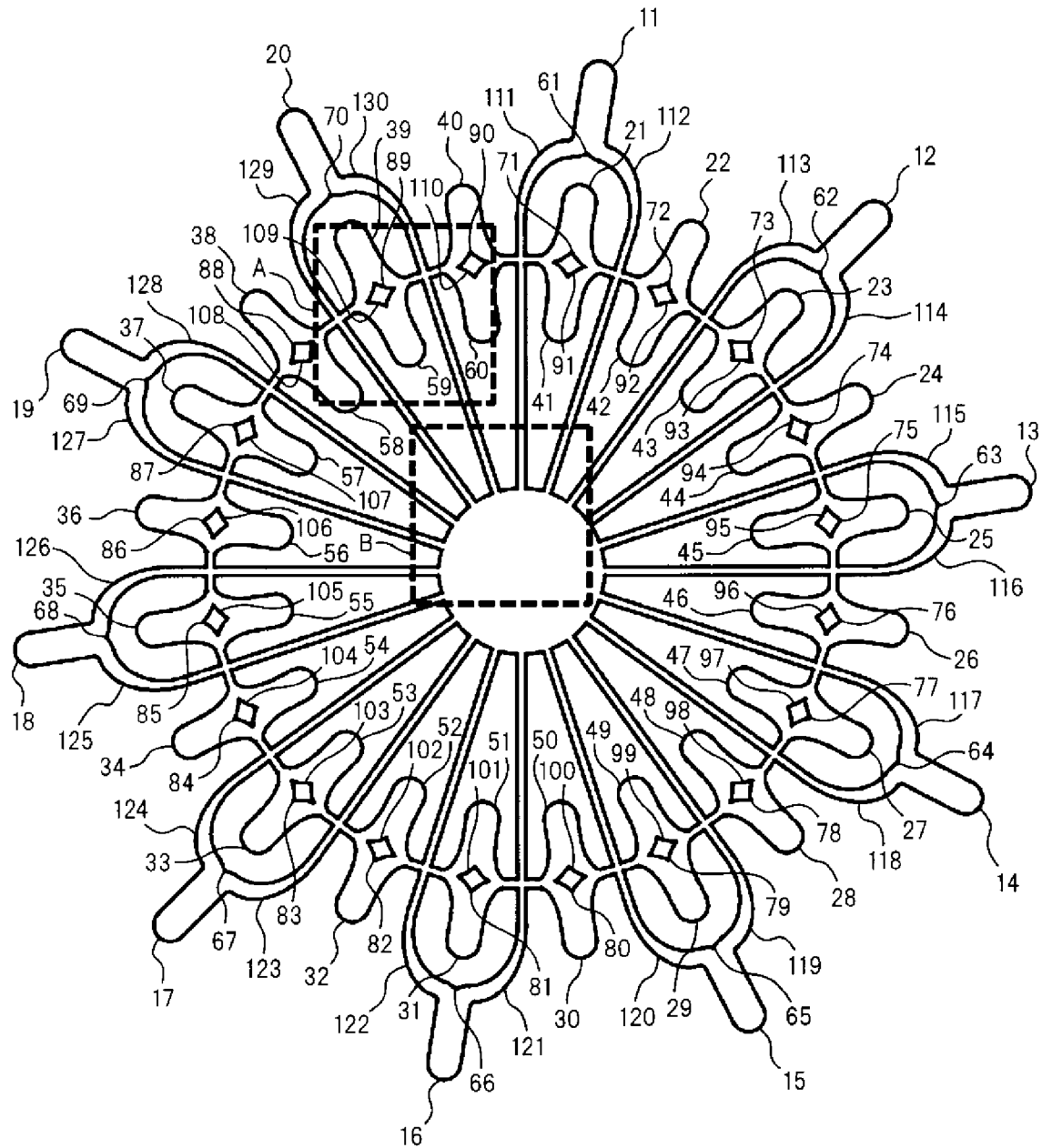
[図13]

図13



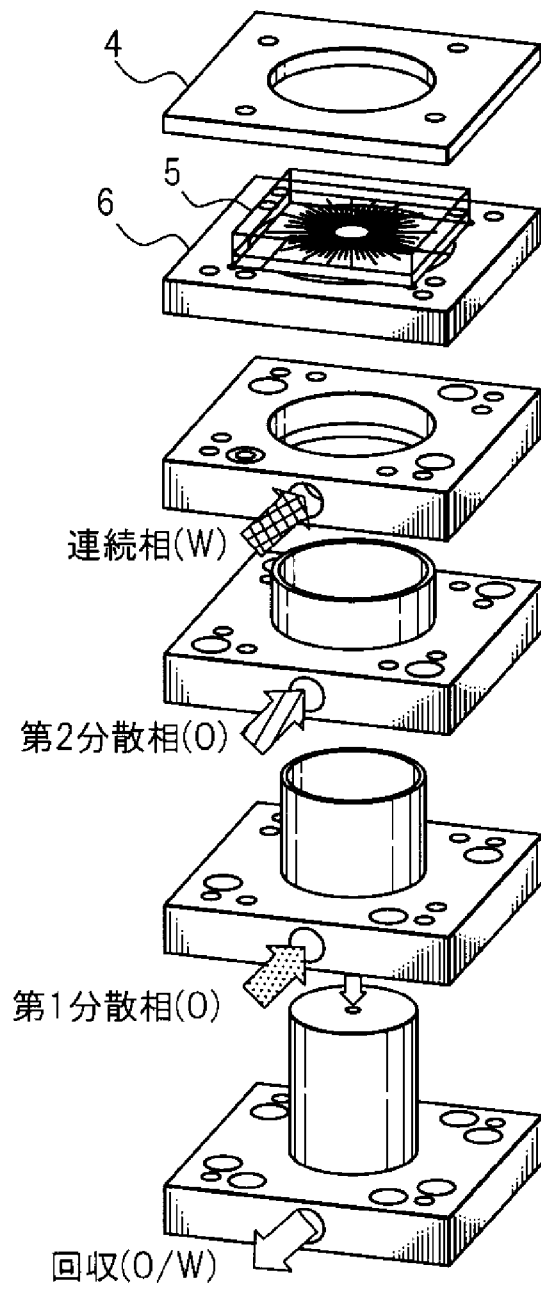
[図14]

図14



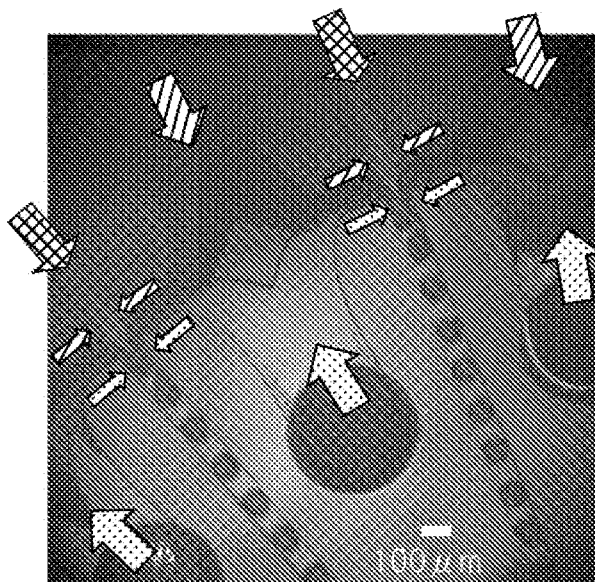
[図15]

図15



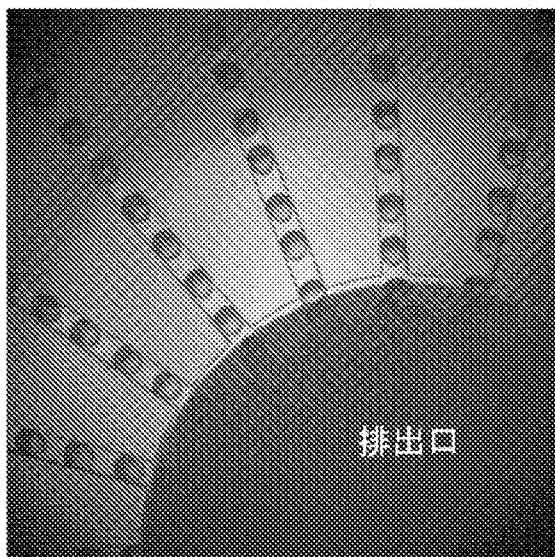
[図16]

図16



[図17]

図17



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/066004

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B01F3/08(2006.01)i, B01F5/00(2006.01)i, B01J13/00(2006.01)i, B01J19/00(2006.01)i

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)

B01F1/00-5/26, B01F15/00-15/06, B01J13/00, B01J19/00

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

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2011

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2011 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2011

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	WO 2007/026564 A1 (The University of Tokyo), 08 March 2007 (08.03.2007), entire text (Family: none)	1-3, 5, 6, 8-13, 15-19 4, 7, 14, 20
Y A	JP 2004-344877 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 09 December 2004 (09.12.2004), paragraphs [0088] to [0097]; fig. 1 to 6 & US 2004/0213083 A1 & EP 1473077 A2 & CN 1550255 A & AT 375199 T & CN 101822952 A	1-3, 5, 6, 8-13, 15-19 4, 7, 14, 20
Y	JP 2004-237177 A (Japan Science and Technology Agency), 26 August 2004 (26.08.2004), paragraphs [0067] to [0073]; fig. 21, 22 (Family: none)	21



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

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

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

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

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
07 October, 2011 (07.10.11)

Date of mailing of the international search report
18 October, 2011 (18.10.11)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/066004

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2006-320772 A (Hitachi Plant Technologies, Ltd.), 30 November 2006 (30.11.2006), paragraphs [0020] to [0021]; fig. 1 & US 2006/0275180 A1 & EP 1724006 A2	21
A	WO 2005/089921 A1 (Japan Science and Technology Agency), 29 September 2005 (29.09.2005), entire text & US 2007/0196397 A1 & EP 1757357 A1 & CA 2560272 A & CN 1933898 A	1-21
A	JP 2004-243308 A (Tosoh Corp.), 02 September 2004 (02.09.2004), entire text & US 7338641 B2 & US 2004/0022690 A1 & EP 1391237 A2	1-21
A	JP 2003-103152 A (Fujifilm Corp.), 08 April 2003 (08.04.2003), entire text (Family: none)	1-21

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. B01F3/08(2006.01)i, B01F5/00(2006.01)i, B01J13/00(2006.01)i, B01J19/00(2006.01)i

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（I P C））

Int.Cl. B01F1/00-5/26, B01F15/00-15/06, B01J13/00, B01J19/00

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

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

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y A	W0 2007/026564 A1（国立大学法人東京大学）2007.03.08, 全文（ファミリーなし）	1-3, 5, 6, 8-13, 15-19 4, 7, 14, 20
Y A	JP 2004-344877 A（富士写真フイルム株式会社）2004.12.09, 段落【0088】 - 【0097】, 図 1-6 & US 2004/0213083 A1 & EP 1473077 A2 & CN 1550255 A & AT 375199 T & CN 101822952 A	1-3, 5, 6, 8-13, 15-19 4, 7, 14, 20

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

0 7 . 1 0 . 2 0 1 1

国際調査報告の発送日

1 8 . 1 0 . 2 0 1 1

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / 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）

関口 哲生

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 3 7 7

3 M

9 3 3 6

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2004-237177 A (独立行政法人科学技術振興機構) 2004. 08. 26, 段落【0067】 - 【0073】, 図 21, 22 (ファミリーなし)	21
Y	JP 2006-320772 A (株式会社日立プラントテクノロジー) 2006. 11. 30, 段落【0020】 - 【0021】, 図 1 & US 2006/0275180 A1 & EP 1724006 A2	21
A	WO 2005/089921 A1 (独立行政法人科学技術振興機構) 2005. 09. 29, 全文 & US 2007/0196397 A1 & EP 1757357 A1 & CA 2560272 A & CN 1933898 A	1-21
A	JP 2004-243308 A (東ソー株式会社) 2004. 09. 02, 全文 & US 7338641 B2 & US 2004/0022690 A1 & EP 1391237 A2	1-21
A	JP 2003-103152 A (富士フイルム株式会社) 2003. 04. 08, 全文 (ファミリーなし)	1-21