

(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
2022年5月27日(27.05.2022)



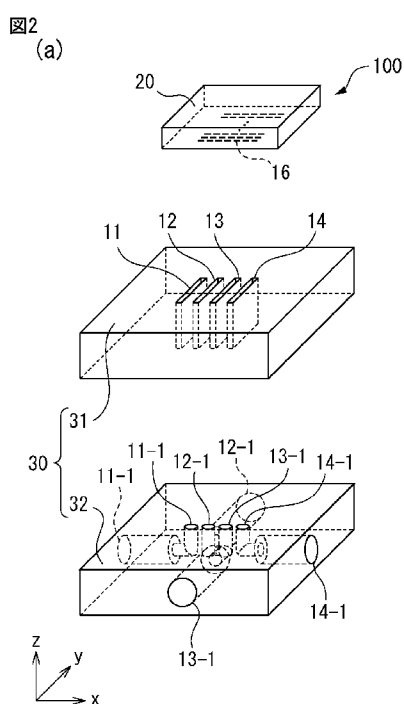
(10) 国際公開番号

WO 2022/107898 A1

- (51) 国際特許分類:
B01F 23/41 (2022.01) *B01J 13/00* (2006.01)
B01F 25/40 (2022.01) *B01J 19/00* (2006.01)
B81B 1/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2021/042781
- (22) 国際出願日: 2021年11月22日(22.11.2021)
- (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 2020-193256 2020年11月20日(20.11.2020) JP
- (71) 出願人: 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丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 西迫 貴志 (NISISAKO, Takashi); 〒1528550 東京都目黒区大岡山2丁目1番1号 国立大学法人東京工業大学内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 青木 篤, 外 (AOKI, Atsushi et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門一丁目2番1号 虎ノ門ヒルズ森タワー 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, IT, JO, JP, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, 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,

(54) Title: MICRO TWO-PHASE LIQUID DROPLET GENERATION DEVICE

(54) 発明の名称: マイクロ二相液滴生成デバイス



(57) Abstract: Provided is a micro two-phase liquid droplet generation device which does not require individual through holes corresponding to a plurality of flow channels for two-phase liquid droplet generation. The micro two-phase liquid droplet generation device according to the present invention comprises a row of a plurality of micro flow channels, a liquid transport port, and a slit, and is configured to form two-dispersed-phase parallel continuous streams at a first connection part between the plurality of micro flow channels through which a first dispersed phase flows and the slit through which a second dispersed phase flows. Furthermore, the micro two-phase liquid droplet generation device can be configured such that a continuous-phase liquid is sent to a second connection part between the plurality of micro flow channels through which the two-dispersed-phase parallel continuous streams flow and another liquid transport port that is preferably a second slit located downstream of the slit, the two-dispersed-phase parallel continuous streams are sheared at the second connection part to generate two-phase liquid droplets, in particular core-shell or Janus two-phase liquid droplets, and the product is collected from a discharge port.

WO 2022/107898 A1

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))

(57) 要約：本発明は、複数の二相液滴生成用流路に対応する個別の貫通孔を必要としないマイクロ二相液滴生成デバイスを提供する。本発明のマイクロ二相液滴生成デバイスは、複数のマイクロ流路の列と液体輸出口及びスリットとを備え、第1分散相が流れる複数のマイクロ流路と第2分散相が流れるスリットとの第1の接続箇所において二分散相並行連続流を形成するように構成してなる。さらに、二分散相並行連続流が流れる複数のマイクロ流路と、スリットの下流側の好ましくは第2のスリットであるもう1つの液体輸出口との第2の接続箇所に、連続相を送液して、第2の接続箇所において二分散相並行連続流をせん断して、二相液滴、特にコアシェル型又はヤヌス型の二相液滴を生成し、生成物を排出口から回収することができる。

明 細 書

発明の名称：マイクロ二相液滴生成デバイス

技術分野

[0001] 本発明は、マイクロ二相液滴を生成するデバイスに関する。

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。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。本発明者らは、また、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（特許文献1）、さらに、複数のマイクロ流路の列と、その列に対して垂直な方向に配置したスリットとを三次元的に組み合わせた液滴の生成装置を開発している（特許文献2）。

[0003] 一方、微小液滴の生成技術は、微小液滴が複数の分散相により構成されるエマルションの生成にも応用されている。具体的には、例えば、Y字型の微細流路を用いて二分散相並行連続流を形成してから、Y字型微細流路と同じ平面内で、二分散相並行連続流に対して垂直な方向からの連続流で二分散相並行連続流をせん断することで、コアシェル型又はヤヌス型の二相液滴が生成されることが知られている（非特許文献1）。

[0004] しかしながら、このような二相液滴の製造装置では、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。一方で、処理量の向上を目的とし、二分散相並行連続流の形成および二相液滴の生成用の微細流路構造を複数、微細流路基板上に並べた場合、微細流路基板内部の各流路に基板外部から2つの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）として、基板内部の各流路と基

板外部を接続する個別の貫通孔を基板に複数設ける必要がある。また基板のこれら複数の液体供給口に対応した液体供給経路を有する、微細流路基板保持用ホルダーを組み合わせて用いる必要がある。したがって、Y字型微細流路を利用する、従来の二次元的に配置された微細流路では、二相液滴を大量に生成するには複雑な構造を持つ装置が必要であり、簡単な装置で大量に生成することは困難である。

先行技術文献

特許文献

- [0005] 特許文献1 : W02007/026564
特許文献2 : W02019/168130

非特許文献

- [0006] 非特許文献1 : Microfluidics and Nanofluidics (2010)9;427-437

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0007] 本発明は、上記の課題を解決し、従来の二相液滴生成デバイスでは、二分散相並行連続流形成用のY字型流路が二次元平面に配置されていたのとは異なり、スリットとマイクロ流路アレイを三次元的に組み合わせた単純な構成により、従来よりも容易に実装管理ができ且つ二分散相並行連続流形成部が高密度に配置されたマイクロ二相液滴生成デバイス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] 本発明は、スリットとマイクロ流路アレイを三次元的に組み合わせた単純な構成によりマイクロ二相液滴を生成することができることを確認し、従来よりも容易に実装管理ができ且つ二分散相並行連続流形成部が高密度に配置されたマイクロ二相液滴生成のためのデバイスを提供するものである。
- [0009] 本発明の好適な態様は下記である。

(態様1)

複数のマイクロ流路（16）の列と、

該マイクロ流路（16）の長手方向に次の順序で配置された、第1液体輸送口（11）、第1スリット（12）、第2液体輸送口（13）及び第3液体輸送口（14）と、

を備えるマイクロ二相液滴生成デバイス（100）であって、

ここで、「スリット」とは、該複数のマイクロ流路（16）の列が存在する基準面において幅と該幅の寸法より大きい寸法の軸線を有する線状の端面を有し、該複数のマイクロ流路（16）の列は、該基準面上に存在し、該複数のマイクロ流路（16）の列は、該基準面を終端とする該スリット（12）と該基準面で接続されており、該スリット（12）は、該基準面を終端として該基準面から該基準面の下に横断方向に延在するものと定義され、

該第1スリット（12）は、第2分散相供給口（12-1）の一部を構成するものであり、第2液体輸送口（13）は、連続相供給口又は排出口の一部を構成するものであり、かつ該第1スリット（12）及び該第2液体輸送口（13）は、該複数のマイクロ流路（16）との接続箇所を終端とするものであり、

該複数のマイクロ流路（16）は、該第1スリット（12）及び該第2液体輸送口（13）の終端の存在する面において、該第1液体輸送口（11）の終端と該第1スリット（12）の終端とを接続し、該第1スリット（12）の終端と該第2液体輸送口（13）の終端を接続し、第2液体輸送口（13）の終端と第3液体輸送口（14）の終端を接続するように配置され、ここで、該第2液体輸送口（13）は連続相供給口の終端であるか又は排出口の終端であり、該第2液体輸送口（13）が連続相供給口の終端であるときは、該第3液体輸送口（14）は排出口であり、該第2液体輸送口（13）が排出口の終端であるときは、該第3液体輸送口（14）は連続相供給口であり、

第1分散相（1）が該第1液体輸送口（11）から該複数のマイクロ流路（16）に供給され、第2分散相（2）が該第1スリット（12）から該複

数のマイクロ流路（16）に供給され、ここで、第1分散相（1）と第2分散相（2）とは、互いに完全には混じり合わない液体であり、

該第1スリット（12）の終端と該第2液体輸送口（13）の終端とを結ぶ該マイクロ流路（16）において、該第1分散相（1）と該第2分散相（2）は、該第1分散相（1）と該第2分散相（2）の二相を並行に含む連続流である二相並行連続流（4）を形成し、

連続相（3）が該第2液体輸送口（13）又は該第3液体輸送口（14）の一方から該複数のマイクロ流路（16）に供給され、

該第2液体輸送口（13）と該複数のマイクロ流路（16）との接続箇所において、該第1分散相（1）と該第2分散相（2）による二相液滴（5）が生成され、

該二相液滴（5）を含む生成物（6）は該第2液体輸送口（13）又は該第3液体輸送口（14）の他方から回収される、

ように構成してなるマイクロ二相液滴生成デバイス。

（態様2）

該第2液体輸送口（13）が第2スリットであり、該第2スリット（13）も前記のスリットの定義を満たし、該第2液体輸送口（13）と該複数のマイクロ流路（16）との該接続箇所において、該連続相（3）の流れを駆動力として該二相並行連続流（4）をせん断して、該二相液滴（5）を生成する、態様1に記載のマイクロ二相液滴生成デバイス。

（態様3）

該二相液滴（5）がコアシェル型二相液滴である、態様1又は2に記載のマイクロ二相液滴生成デバイス。

（態様4）

該二相液滴（5）がヤヌス型二相液滴である、態様1又は2に記載のマイクロ二相液滴生成デバイス。

（態様5）

該第1液体輸送口（11）の終端、第2液体輸送口（13）の終端及び／

又は第3液体輸送口（14）の終端がスリット状である，態様1～4のいずれか一項に記載されたマイクロ二相液滴生成デバイス。

（態様6）

該第1スリット（12）を含むスリット（11，12，13，14）が，平板状のスリットである，態様1～5のいずれか一項に記載されたマイクロ二相液滴生成デバイス。

（態様7）

該第1スリット（12）を含むスリット（11，12，13，14）が，環状のスリットである，態様15のいずれか一項に記載されたマイクロ二相液滴生成デバイス。

（態様8）

該スリット（12）を備えた部品（30，41，43）と，表面に複数の微細溝（16，16-2，16-4）の列が加工された平板部品（20，22，24）とを，互いに位置あわせして，該複数のスリット（12，13）の終端の面と、該平板部品（20，22，24）の該微細溝（16，16-2，16-4）が加工された側の面とを貼り合わせることで構成される，態様6または7に記載されたマイクロ二相液滴生成デバイス。

（態様9）

該スリット（12）を備えた部品（33，42，44）の表面に該複数の微細溝（16）の列が加工されており，別の平板部品（21，23，25）によって該微細溝（16-1，16-3，16-5）を密封することで該複数のマイクロ流路の列が形成される，態様6または7に記載されたマイクロ二相液滴生成デバイス。

（態様10）

該マイクロ流路（16）の内壁を親水性表面で構成し，該第1分散相（1）が有機相であり，該第2分散相（2）が有機相であり、該連続相が水相であり、コアシェル型又はヤヌス型マイクロ液滴を生成する，態様1～9のいずれか一項に記載のマイクロ二相液滴生成デバイス。

(態様 1 1)

該第 2 液体輸送口 (1 3) の内壁を親水性表面で構成し、該第 1 分散相 (1) が有機相であり、該第 2 分散相 (2) が有機相であり、該連続相が水相であり、コアシェル型又はヤヌス型マイクロ液滴を生成する、態様 1 ~ 9 のいずれか一項に記載のマイクロ二相液滴生成デバイス。

(態様 1 2)

該第 1 スリット (1 2) の終端と該第 2 液体輸送口 (1 3) の終端とを結ぶ該マイクロ流路 (1 6) の内壁が疎水性表面で構成され、該第 2 液体輸送口 (1 3) の終端と該第 3 液体輸送口 (1 4) の終端とを結ぶ該マイクロ流路 (1 6) の内壁が親水性表面で構成され、該第 1 分散相 (1) と該第 2 分散相 (2) のいずれか一方が水相、他方が有機相であり、該連続相 (3) が水相であり、該連続相 (3) が該第 2 液体輸送口 (1 3) から該マイクロ流路 (1 6) に供給され、水相をコア、有機相をシェルとするコアシェル型マイクロ液滴を生成する、態様 1 ~ 9 のいずれか一項に記載のマイクロ二相液滴生成デバイス。

(態様 1 3)

該第 1 スリット (1 2) の終端と該第 2 液体輸送口 (1 3) の終端とを結ぶ該マイクロ流路 (1 6) の内壁が疎水性表面で構成され、該第 2 液体輸送口 (1 3) の内壁が親水性表面で構成され、該第 1 分散相 (1) と該第 2 分散相 (2) のいずれか一方が水相、他方が有機相であり、該連続相 (3) が水相であり、該連続相 (3) が該第 3 液体輸送口 (1 4) から該マイクロ流路 (1 6) に供給され、水相をコア、有機相をシェルとするコアシェル型マイクロ液滴を生成する、態様 1 ~ 9 のいずれか一項に記載のマイクロ二相液滴生成デバイス。(態様 1 4)

該第 1 分散相を相 1、該連続相を相 2、該第 2 分散相を相 3 とし、該相 1 と該相 2 の間の界面張力を γ_{12} 、該相 1 と該相 3 の間の界面張力を γ_{13} 、該相 2 と該相 3 の間の界面張力を γ_{23} のように表示すると、 $\gamma_{12} > \gamma_{23}$ であり、かつ $S_i = \gamma_{jk} - (\gamma_{ij} + \gamma_{ki})$ [式中、 $i \neq j \neq k$ は 1, 2, 3] で定

義されるspreading parameter S_i が、 $S_1 < 0$ 、 $S_2 < 0$ 、 $S_3 > 0$ であり、コアシェル型マイクロ液滴が生成される、態様1～3、5～13のいずれか一項に記載のマイクロ二相液滴生成デバイス。

(態様15)

該第1分散相を相1、該連続相を相2、該第2分散相を相3とし、該相1と該相2の間の界面張力を γ_{12} 、該相1と該相3の間の界面張力を γ_{13} 、該相2と該相3の間の界面張力を γ_{23} のように表示すると、 $\gamma_{12} > \gamma_{23}$ であり、 $S_i = \gamma_{jk} - (\gamma_{ij} + \gamma_{ki})$ [式中、 $i \neq j \neq k$ は1, 2, 3]で定義されるspreading parameter S_i が、 $S_1 < 0$ 、 $S_2 < 0$ 、 $S_3 < 0$ であり、ヤヌス型マイクロ液滴が生成される、態様1, 2, 4～11のいずれか一項に記載のマイクロ二相液滴生成デバイス。

発明の効果

[0010] 本発明は、各二分散相並行連続流形成用流路に対応する個別の貫通孔を必要としないマイクロ二相液滴生成デバイスを提供する。さらに、本発明は、従来のデバイスにおいて二分散相並行連続流形成用のY字型流路が二次元平面に配置されていたのと異なり、スリットとマイクロ流路アレイを三次元的に組み合わせた単純な構成により、従来よりも容易に実装管理ができ且つ二分散相並行連続流形成部が高密度に配置されたマイクロ二相液滴生成デバイスを提供する。

図面の簡単な説明

[0011] [図1]実施態様1のマイクロ二相液滴生成デバイスを示す模式斜視図である。
[図2]実施態様1のマイクロ二相液滴生成デバイスにおける、(a)は微細溝アレイ基板と液体分配部品の分解斜視図、(b)は微細溝アレイ基板と液体分配部品の平面図および断面図である。
[図3] (a)は、実施態様1のマイクロ二相液滴生成デバイスの模式断面において、マイクロ流路とスリットによって二相並行連続流が形成され、二相液滴が生成される様子を示す図であり、(b)は、実施態様2のマイクロ二相液滴生成デバイスの模式断面において、マイクロ流路とスリットによって二

相並行連続流が形成され、二相液滴が生成される様子を示す図である。

[図4]本発明において液体分配装置に接合される微細溝を有する部品の溝形状の例を示す図である。

[図5]実施態様3のマイクロ二相液滴生成デバイスにおける、(a)は微細溝密封用蓋と微細溝が加工された液体分配部品の分解斜視図、(b)は微細溝密封用蓋と液体分配部品の平面図および断面図である。

[図6](a)は、実施態様3のマイクロ二相液滴生成デバイスの模式断面において、マイクロ流路とスリットによって二相並行連続流が形成され、二相液滴が生成される様子を示す図であり、(b)は、実施態様4のマイクロ二相液滴生成デバイスの模式断面において、マイクロ流路とスリットによって二相並行連続流が形成され、二相液滴が生成される様子を示す図である。

[図7]本発明において、液体分配装置上のスリットと微細溝の形状の一例を示す図である。

[図8]実施態様5のマイクロ二相液滴生成デバイスにおける、(a)は4つの部材を組み立てた後の円環状液体分配装置の一部断面斜視図、(b)は微細溝を有する部品と液体分配装置を接合した際の上面図である。

[図9](a)は、実施態様5のマイクロ二相液滴生成デバイスの模式断面において、マイクロ流路とスリットによって二相並行連続流が形成され、二相液滴が生成される様子を示す図であり、(b)は、実施態様6のマイクロ二相液滴生成デバイスの模式断面において、マイクロ流路とスリットによって二相並行連続流が形成され、二相液滴が生成される様子を示す図である。

[図10]実施態様7のマイクロ二相液滴生成デバイスにおける、(a)は4つの部材を組み立てた後の円環状液体分配装置の断面図、(b)は微細溝が加工された液体分配装置に蓋を接合した際の上面図である。

[図11](a)は、実施態様7のマイクロ二相液滴生成デバイスの模式断面において、マイクロ流路とスリットによって二相並行連続流が形成され、二相液滴が生成される様子を示す図であり、(b)は、実施態様8のマイクロ二相液滴生成デバイスの模式断面において、マイクロ流路とスリットによって

二相並行連続流が形成され、二相液滴が生成される様子を示す図である。

[図12]実施態様9のマイクロ二相液滴生成デバイスにおいて、5つの部材を組み立てた後の円環状液体分配装置の断面を含む斜視図を示す（微細溝を有する部品と液体分配装置を接合）。

[図13]実施態様10のマイクロ二相液滴生成デバイスにおいて、5つの部材を組み立てた後の円環状液体分配装置の断面を含む斜視図を示す（微細溝が加工された液体分配装置に蓋を接合）。

[図14]実施例1における、コアシェル型二相液滴生成の様子を示す（二分散相流量（ Q_m ）＝（ Q_s ）＝6 mL/h，連続相流量（ Q_c ）＝30 mL/h）。

[図15]実施例1で生成されたコアシェル型二相液滴を装置外部で撮影した写真及びサイズ分布を示す。

[図16-1]実施例2における、ヤヌス型二相液滴生成の様子を示す（二分散相流量（ Q_m ）＝（ Q_s ）＝6 mL/h，連続相流量（ Q_c ）＝30 mL/h）。

[図16-2]実施例2で生成されたヤヌス型二相液滴を装置外部で撮影した写真を示す。

[図17]実施例3で生成されたヤヌス型二相液滴を装置外部で撮影した写真を（a）に、サイズ分布を（b）に示す（二分散相流量（ Q_m ）＝8 mL/h，（ Q_s ）＝4 mL/h，連続相流量（ Q_c ）＝30 mL/h）。

発明を実施するための形態

- [0012] 本発明は、
複数のマイクロ流路（16）の列と、
該マイクロ流路（16）の長手方向に次の順序で配置された、第1液体輸送口（11）、第1スリット（12）、第2液体輸送口（13）及び第3液体輸送口（14）と、
を備えるマイクロ二相液滴生成デバイス（100）であって、
ここで、「スリット」とは、該複数のマイクロ流路（16）の列が存在す

る基準面において幅と該幅の寸法より大きい寸法の軸線を有する線状の端面を有し、該複数のマイクロ流路（16）の列は、該基準面上に存在し、該複数のマイクロ流路（16）の列は、該基準面を終端とする該スリット（12）と該基準面で接続されており、該スリット（12）は、該基準面を終端として該基準面から該基準面の下に横断方向に延在するものと定義され、

該第1スリット（12）は、第2分散相供給口（12-1）の一部を構成するものであり、該第2液体輸出口（13）は、連続相供給口又は排出口の一部を構成するものであり、かつ該第1スリット（12）及び該第2液体輸出口（13）は、該複数のマイクロ流路（16）との接続箇所を終端とするものであり、

該複数のマイクロ流路（16）は、該第1スリット（12）及び該第2液体輸出口（13）の終端の存在する面において、該第1液体輸出口（11）の終端と該第1スリット（12）の終端とを接続し、該第1スリット（12）の終端と該第2液体輸出口（13）の終端を接続し、該第2液体輸出口（13）の終端と第3液体輸出口（14）の終端を接続するように配置され、ここで、該第2液体輸出口（13）は連続相供給口の終端であるか又は排出口の終端であり、該第2液体輸出口（13）が連続相供給口の終端であるときは、該第3液体輸出口（14）は排出口であり、該第2液体輸出口（13）が排出口の終端であるときは、該第3液体輸出口（14）は連続相供給口であり、

第1分散相（1）が該第1液体輸出口（11）から該複数のマイクロ流路（16）に供給され、第2分散相（2）が該第1スリット（12）から該複数のマイクロ流路（16）に供給され、ここで、該第1分散相（1）と該第2分散相（2）とは、互いに完全には混じり合わない液体であり、

該第1スリット（12）の終端と該第2液体輸出口（13）の終端とを結ぶ該マイクロ流路（16）において、該第1分散相（1）と該第2分散相（2）は、該第1分散相（1）と該第2分散相（2）の二相を並行に含む連続流である二相並行連続流（4）を形成し、

連続相（３）が該第２液体輸送口（１３）又は該第３液体輸送口（１４）の一方から該複数のマイクロ流路（１６）に供給され、

該第２液体輸送口（１３）と該複数のマイクロ流路（１６）との接続箇所において、該第１分散相（１）と該第２分散相（２）による二相液滴（５）が生成され、

該二相液滴（５）を含む生成物（６）は該第２液体輸送口（１３）又は該第３液体輸送口（１４）の他方から回収される、

ように構成してなるマイクロ二相液滴生成デバイスを提供する。

[0013] 本発明のマイクロ二相液滴生成デバイスは、複数のマイクロ流路の列と、少なくとも１つのスリットとを備える。また、本発明では、上記１つのスリットとともに、３つの液体輸送口を備え、これらの３つの液体輸送口の終端は１つ、２つ又は３つともスリットであることができる。

[0014] （マイクロ流路）

本発明において、マイクロ流路の大きさは、目的に応じて決定しうるが、幅および高さが通常 $0.1 \sim 1000 \mu\text{m}$ 程度、好ましくは $1 \sim 500 \mu\text{m}$ 程度、より好ましくは $10 \sim 100 \mu\text{m}$ 程度から選ばれる。マイクロ流路の断面形状は、特に制限されないが、好ましくは、矩形、台形、三角形、半円、円、楕円、半楕円の中から加工対象の材料および加工手段に合わせて選択される。

[0015] 本発明において、マイクロ流路の長さは、目的に応じて決定しうるが、通常 $0.1 \sim 100 \text{mm}$ 程度、好ましくは $1 \sim 50 \text{mm}$ 程度、より好ましくは $2 \sim 20 \text{mm}$ 程度から選ばれる。

[0016] 本発明において、複数のマイクロ流路の列の並び方は、限定的ではないが、例えば、並行（流路間の間隔が一定ではなくてもよく互いに交わらないで並行している）、平行（流路間の間隔が一定）、放射状などであってよい。

[0017] 本発明において、複数のマイクロ流路の列におけるマイクロ流路の間隔は、目的に応じて決定しうるが、最も狭い箇所において、通常 $0.1 \sim 1000 \mu\text{m}$ 程度、好ましくは $1 \sim 500 \mu\text{m}$ 程度、より好ましくは $10 \sim 20$

0 μ m程度から選ばれる。

[0018] 本発明において、複数のマイクロ流路の数は、目的に応じて決定しうるが、通常2～100,000程度、好ましくは10～50,000程度、より好ましくは100～10,000程度から選ばれる。

[0019] (スリット、液体輸送口)

本発明において、スリットは、基準面（特に基準平面；仮想面であるが、実際の面であってもよい）において幅と該幅の寸法より大きい寸法の軸線（スリット長さ）を有する線状のスリット端面を有し、基準面はその上に複数のマイクロ流路の列が存在する面であり、スリットは、その基準面を終端として基準面から基準面の下向きに横断方向に延在する。スリット端面の形状は、特に限定されず、例えば、直線状、円環状であってよい。スリットの横断方向の寸法は、スリットの深さ（高さ）ともいえる。スリットの横断方向の寸法は、同じ方向におけるマイクロ流路の寸法と比べて有意に大きい寸法であり、例えば、マイクロ流路の上記寸法の3倍以上、6倍以上、10倍以上であってよい。

[0020] 複数のマイクロ流路の列は、上記基準面の上に存在し、複数のマイクロ流路の列は、基準面を終端とするスリットと基準面で接続されている。すなわち、複数のマイクロ流路は、基準面においてスリットとの接続箇所を有する。

[0021] 本発明のマイクロ二相液滴生成デバイスは、第1分散相供給口、第2分散相供給口、連続相供給口、排出口を有する。第1分散相供給口は、複数のマイクロ流路に対して第1分散相を供給する輸送経路である。第2分散相供給口は、複数のマイクロ流路に対して第2分散相を供給する輸送経路であり、複数のマイクロ流路との接続箇所を有する。連続相供給口は、複数のマイクロ流路に対して連続相を供給する輸送経路であり、複数のマイクロ流路との接続箇所を有する。排出口は、複数のマイクロ流路から生成した液滴生成物を排出する輸送経路であり、複数のマイクロ流路との接続箇所を有する。

[0022] 第1分散相供給口、第2分散相供給口及び連続相供給口は、それぞれ、タ

ンクなどの第1分散相、第2分散相及び連続相を供給するための第1分散相供給源、第2分散相供給源及び連続相供給源に接続される。排出口は、生成した二相液滴生成物を回収し、收容するための手段に接続される。

[0023] 本発明において、スリットは、少なくとも1つのスリット（第1スリット）を含み、第1スリットは第2分散相供給用スリットである。しかし、本発明において、スリットは、第1スリット以外に、第1液体輸送口（第1分散相供給用液体輸送口）、第2液体輸送口（連続相供給用又は排出用液体輸送口）及び／又は第3液体輸送口（排出用又は連続相供給用液体輸送口）の終端としてスリットを含んでよい。特に1つの好ましい態様において、少なくとも、第2分散相供給用の第1スリットと、連続相供給用又は排出用の第2スリットとを含む。ここに、第1分散相供給用スリット（第1液体輸送口）、第2分散相供給用スリット（第1スリット）、連続相供給用又は排出用スリット（第2液体輸送口、第2スリット）、及び排出用又は連続相供給用スリット（第3液体輸送口）を有する場合、これらのスリットは、それぞれ、第1分散相供給口（第1液体輸送口）、第2分散相供給口、連続相供給口又は排出口、及び排出口又は連続相供給口（第3液体輸送口）の一部を構成するものであり、かつ複数のマイクロ流路との接続箇所を終端とするものである。

[0024] 本発明のマイクロ二相液滴生成デバイスでは、複数のマイクロ流路の列によって形成される面（特に平面）において、複数のマイクロ流路の長手方向に、第1液体輸送口（第1分散相供給口）、第1スリット（第2分散相供給用スリット）、第2液体輸送口（連続相供給口又は排出口、好ましくは第2スリット）、及び第3液体輸送口（排出口又は連続相供給口）のそれぞれの終端が、この順序で配置されている。第2液体輸送口（第2スリット）が連続相供給口の一部を構成するものである場合、第2液体輸送口（第2スリット）の終端の次は排出口の終端であり、第2液体輸送口（第2スリット）が排出口の一部を構成するものである場合、第2液体輸送口（第2スリット）の終端の次は連続相供給口の終端である。ここで、上記のように、第1分散

相供給口、及び／又は第2液体輸送口及び／又は第3液体輸送口としての排出口及び／又は連続相供給口は、上記したように、その終端がスリットであってもよい。

[0025] 複数のマイクロ流路は、スリットの終端が存在する、スリットを横断する面（基準面；特にスリットに垂直な面）において、スリットの終端とその隣の液体輸送口又はスリット（液体供給口または排出口）とを接続するように配置されている。

[0026] （二相並行連続流の形成）

本発明では、上記の構成を有するマイクロ二相液滴生成デバイスにおいて、第1分散相が第1液体輸送口（第1分散相供給口）から複数のマイクロ流路に供給され、第2分散相が第1スリット（第2分散相供給用スリット）から複数のマイクロ流路に供給され、第1スリット（第2分散相供給用スリット）とマイクロ流路との接続箇所第1分散相と第2分散相が出会い、第1スリットの終端と第2液体輸送口（好ましくは第2スリット）の終端とを結ぶマイクロ流路において、第1分散相と第2分散相の二相を並行に含む連続流である二相並行連続流を形成する。第1スリットの終端と第2液体輸送口（好ましくは第2スリット）の終端とを結ぶマイクロ流路において、第1分散相と第2分散相が二相並行連続流を形成することは、基本的に第1分散相と第2分散相が互いに完全には混じり合わないこと、および第1分散相と第2分散相が合流した際にいずれか一方が他方中に液滴として形成されないことによって可能になるが、第1分散相及び第2分散相の流速、第1分散相及び第2分散相のマイクロ流路壁に対する濡れ性を調整することが好ましい。

[0027] 二相並行流とは、流れの横断面において二相が分離していること、例えば、上下あるいは左右のように分離したり（二相の配置の向きは自由であり、二相の大きさは異なってよく、二相の境界線は直線でなく、曲線でもよい。）、あるいは内側と外側に、同心円のように分離してもよい（同心円のようにとっても、外側の相はマイクロ流路の断面形状に従ってよく、内側相は

完全な円形でなくてもよい。) 。二相が分離するとき、1相を中央にその両側に他の1相が並行する並行流も可能である。ここで、二相が分離しているとは、第1分散相と第2分散相とが全く混じり合わない場合に限定されるものではなく、第1分散相と第2分散相の一部が混じり合ったり、少なくとも一方が他方に溶解、拡散していてもよいが、巨視的に流れを観察して二相の流れが認められることをいう。

[0028] また、二相並行連続流とは、第1スリット(第2分散相供給用スリット)の終端と第2液体輸送口の終端とを結ぶマイクロ流路において、二相並行流が連続流を形成していることをいう。二相並行流は、第1分散相が流れるマイクロ流路と第1スリット(第2分散相供給用スリット)との接続箇所付近において形成され、マイクロ流路内を流れるが、二相並行連続流とは、特にマイクロ流路と第2液体輸送口との接続箇所に至るまで二相並行流であることを意味する。そして、本発明において、二相並行連続流は、分散相二相並行連続流(二分散相並行連続流)である。

[0029] (二相液滴の生成)

本発明において、連続相が、第2液体輸送口又は第3液体輸送口のいずれかである連続相供給口から複数のマイクロ流路に供給される。ここで、第2液体輸送口は、連続相供給口の終端であるか又は排出口の終端であり、第2液体輸送口が連続相供給口の終端であるときは、第3液体輸送口は排出口であり、第2液体輸送口が排出口の終端であるときは、第3液体輸送口は連続相供給口である。

[0030] このとき、マイクロ流路と第2液体輸送口との接続箇所(仮に接続箇所Xという)において、マイクロ流路の一方の側には第1スリットがあり、他方の側には第3液体輸送口がある。そして、接続箇所Xでは、第1スリットの側のマイクロ流路(仮にマイクロ流路Aという)から上記の二分散相並行連続流が供給されるとともに、第2液体輸送口から又は第3液体輸送口側のマイクロ流路(仮にマイクロ流路Bという)から連続相が供給されるので、二分散相並行連続流と連続相とが出会う。そして、接続箇所Xにおいて、特に

第3液体輸送口が第2スリットである場合に連続相の流れを駆動力として分散相二相並行連続流がせん断されて、第2液体輸送口又はマイクロ流路Bに、第1分散相と第2分散相によるコアシェル型又はヤヌス型などの二相液滴が生成される。生成される二相液滴がコアシェル型であるかヤヌス型であるか、あるいはその他であるか、またコアシェル型の場合に第1分散相と第2分散相のいずれがコアおよびシェルとなるかは、基本的に、第1分散相、第2分散相及び連続相の間の界面張力の関係で決まる。

[0031] コアシェル型又はヤヌス型などの二相液滴を含む生成物は排出口から排出され、回収される。第2液体輸送口が連続相供給口の終端であるときは、排出口はマイクロ流路Bと接続されており、マイクロ流路Bが連続相供給口の終端と接続されているときは、第2液体輸送口が排出口の終端である。

[0032] 第2液体輸送口は、上記のように、連続相供給口又は排出口の一部を構成するものであるが、同時に、両脇のマイクロ流路A及びBとの接続箇所Xにおいて、分散相二相並行連続流と連続相とから分散相のコアシェル型又はヤヌス型などの二相液滴を生成する機能を兼ねる要素である。

[0033] 本発明のマイクロ二相液滴生成デバイスでは、第1スリット以外の液体輸送口（第1分散相供給口、連続相供給口、排出口）が、マイクロ流路と接続する終端がスリットであってもよい。したがって、本発明のマイクロ二相液滴生成デバイスでは、スリットは少なくとも1つであるが、スリットの個数は2つ又はそれ以上であってもよい。例えば、第1液体輸送口である第1分散相供給口の終端と、第2液体輸送口である連続相供給口又は排出口の終端、第3液体輸送口である連続相供給口又は排出口の終端は、任意にスリットであることができる。しかし、第1液体輸送口と第2液体輸送口及び第3液体輸送口の終端は、スリットでなくてもよく、任意に円筒形孔などであってもよい。第1液体輸送口と第2液体輸送口と第3液体輸送口の終端のそれぞれは、複数のマイクロ流路のそれぞれに液体を供給し又は液体を排出できればよく、その終端の数は限定されないが、それぞれ1個であることが構造的に簡単であり、好ましい。

[0034] 第1分散相と第2分散相は、互いに完全には混じり合わずに、二相並行連続流を形成できる組合せであればよく、部分的には互いに混合、溶解又は拡散し合ってもよい。

また、第1分散相と第2分散相は、二相並行連続流を形成後に連続相と出会い、二相液滴を生成するものであり、後に二相液滴を生成できる連続相との組合せが選択される。

[0035] (分散相／連続相)

本発明において、好適には、分散相と連続相を形成する液体は、有機化合物または水である。有機化合物としては、特に制限されないが、好適にはフッ素系オイル、シリコンオイル、デカン、オクタン等のアルカン類、流動パラフィン、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。また、固体またはゲル状の微粒子を得るために、熱や光重合反応、イオン交換反応による架橋等による硬化処理が可能な水相あるいは有機相を分散相として使用することも可能であり、使用できる材料はたとえば、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。

[0036] 分散相は、有機相及び水相のいずれでもよく、二相の分散相の組み合わせは、有機相／水相、水相／有機相、有機相／有機相とすることができる。

また、連続相は有機相及び水相のいずれでもよい。

[0037] 二相分散相および連続相の組み合わせとしては、好ましくは、連続相が有機相のときは、二相分散相を水相／有機相、有機相／有機相、有機相／水相とすることができ、連続相が水相のときは、二相分散相を水相／有機相、有機相／有機相とすることができる。好ましい二相分散相および連続相の組合せは、(有機相／有機相)／水相、(水相／有機相)／水相である。具体例としては、例えば、(アクリレート系モノマー／シリコンオイル)／水、(水／アルカン類)／水、といった組合せがある。

[0038] 連続相中において、コアシェル型又はヤヌス型などのマイクロ二相液滴を

生成するには、連続相と二相の分散相との相互の間の界面張力が、所定の関係にあることが好ましい。

[0039] 理論に限定されるわけではないが、第1分散相を相1、連続相を相2、第2分散相を相3とし、相1と相2の間の界面張力を γ_{12} 、相1と相3の間の界面張力を γ_{13} 、相2と相3の間の界面張力を γ_{23} のように表示し、 $\gamma_{12} > \gamma_{23}$ のとき、 $S_i = \gamma_{jk} - (\gamma_{ij} + \gamma_{ki})$ [式中、 $i \neq j \neq k$ は1, 2, 3] で定義されるspreading parameter S の間に、(i) $S_1 < 0$ 、 $S_2 < 0$ 、 $S_3 > 0$ のときコアシェル型（完全な内包）、(ii) $S_1 < 0$ 、 $S_2 < 0$ 、 $S_3 < 0$ のときヤヌス型（部分的内包）、(iii) $S_1 < 0$ 、 $S_2 > 0$ 、 $S_3 < 0$ のとき非内包（相1と相3は別の液滴を生成）の液滴が生成すると考えられる。ただし、用いる分散相と連続相のそれ自体の界面張力（測定値）は、装置やプロセス条件に依存して、そのまま液滴生成過程において維持されるとは限らず、その界面張力（測定値）が上記の関係式どおりに液滴のタイプを成立させるわけではない。また、連続相とマイクロ流路やスリットの流路壁面との界面張力も影響する。

[0040] したがって、例えば、連続相が水相である場合には連続相が流れる流路の壁面、特に二相液滴が生成して流れる流路の壁面を親水処理し、連続相が有機相である場合には連続相が流れる流路の壁面、特に二相液滴が生成して流れる流路の壁面を疎水処理することが好ましい場合がある。流路壁面が有機樹脂製であれば、一般的に疎水性であり、金属やガラス製である場合には、一般的に親水性である。親水処理としては、例えば、親水性ポリマーによる被覆処理やプラズマ照射処理を用いることができる。疎水処理としては、疎水性ポリマーによる被覆処理を用いることができる。

[0041] 1つの好ましい態様において、水相をコア、有機相をシェルとするコアシェル型マイクロ液滴を生成するために、第1スリット（12）の終端と第2液体輸送口（13）の終端とを結ぶ該マイクロ流路（16）の内壁を疎水性表面で構成し、第2液体輸送口（13）の終端と第3液体輸送口（14）の終端とを結ぶマイクロ流路（16）の内壁を親水性表面で構成し、第1分散

相（１）を水相、第２分散相（２）を有機相、連続相（３）を水相とし、連続相（３）を第２液体輸送口（１３）からマイクロ流路（１６）に供給してよい。

[0042] 同様に、１つの好ましい態様において、第１スリット（１２）の終端と第２液体輸送口（１３）の終端とを結ぶマイクロ流路（１６）の内壁を疎水性表面で構成し、第２液体輸送口（１３）の内壁を親水性表面で構成し、第１分散相（１）が水相、第２分散相（２）が有機相、連続相（３）が水相であり、連続相（３）を第３液体輸送口（１４）からマイクロ流路（１６）に供給して、水相をコア、有機相をシェルとするコアシェル型マイクロ液滴を生成してもよい。

[0043] また別の１つの好ましい態様において、互いに相分離する２つの有機相で構成されるヤヌス型またはコアシェル型などのマイクロ液滴を生成するために、マイクロ流路（１６）の内壁を親水性表面で構成し、第１分散相（１）を有機相、第２分散相（２）を有機相、連続相（３）を水相として、連続相（３）を第２液体輸送口（１３）からマイクロ流路（１６）に供給してよい。

[0044] 同様に、１つの好ましい態様において、第２液体輸送口（１３）の内壁を親水性表面で構成し、第１分散相（１）を有機相、第２分散相（２）を有機相、連続相（３）を水相として、連続相（３）を第３液体輸送口（１４）からマイクロ流路（１６）に供給して、互いに相分離する２つの有機相で構成されるヤヌス型またはコアシェル型などのマイクロ液滴を生成してもよい。

[0045] また、分散相１、分散相２及び連続相の間の界面張力を調整するために、各液体に界面活性剤を添加することができる。

[0046] 単一のマイクロ流路あたりの第１分散相、第２分散相および連続相の流量は、その種類等にもよるが、通常 $0.001\text{ mL} \sim 100\text{ mL}$ /時間程度、好ましくは $0.01\text{ mL} \sim 10\text{ mL}$ /時間程度、より好ましくは $0.1\text{ mL} \sim 5\text{ mL}$ /時間程度から選ばれる。第１分散相と第２分散相の流量は、生成する二相液滴（コアシェル型、ヤヌス型など）における二相分散相の割合を支配す

るが、例えば、1 : 1000から1000 : 1の間程度、1 : 100から100 : 1の間程度、さらには10 : 100から100 : 10の間程度などから選択されてよい。

[0047] 第1分散相と第2分散相の合計流量（二相並行連続流の流量）と、連続相の流量との比は、例えば、1 : 100から100 : 1の間程度、2 : 100から100 : 2の間程度、さらには5 : 100から100 : 5の間程度などから選択されてよいが、連続相の流れによって二相並行連続流をせん断し、サイズの均一性に優れた二相液滴を生成する目的からは、二相並行連続流および連続相流が各々層流を形成するよう、そのレイノルズ数が十分に小さく（ $< 10^3$ ）なるよう流量が設定されることが好ましい。また、使用する液体の物性に大きく左右されるが、分散相流量が連続相流量に対して高すぎる場合や、逆に連続相流量が分散相流量に対して高すぎる場合、両者の合流箇所近傍で二相液滴がせん断されず、さらに下流まで二相並行連続流が続いたり、不規則に液滴が生成されたりといった現象が生じうるため、第2液体輸送口部近傍にて二相液滴が生成されるよう、適宜流量調整を行うことが好ましい。

[0048] （実施態様の例）

以下、本発明の好ましい実施態様の例を、図面を参照して説明するが、本発明はこれらの実施態様に限定されるものではなく、また各実施態様においてもその形状や寸法は限定ではなく、適宜変更できることに留意されるべきである。

[0049] （実施態様1）

本発明の1つの実施態様のマイクロ二相液滴生成デバイス（100）の例を、図1、図2（a）（b）に示す。図1において、マイクロ二相液滴生成デバイス（100）は、上から、微細溝アレイ基板（マイクロ流路アレイともいう。）（20）、液体分配用部品（30）の第1部材（31）及び第2部材（32）を有する。微細溝アレイ基板（20）は、例えば、幅20mm、長さ25mm、高さ4mmの寸法を有する。第1部材（31）及び第2部

材（32）は、それぞれ、例えば、幅30mm、長さ33mm、高さ8mmの寸法を有する。これらの部品及び部材は、互いに位置合わせして、ボルトなどの締結構造によって、相互間を液密に結合される。

[0050] 図2（a）は、マイクロ二相液滴生成デバイス（100）の分解展開斜視図であり、上から順に微細溝アレイ基板（20）、液体分配用部品（30）の第1部材（31）及び第2部材（32）である。図2（b）は、マイクロ二相液滴生成デバイス（100）の微細溝アレイ基板（20）、液体分配用部品（30）の第1部材（31）及び第2部材（32）の平面図と、平面図の右側及び下側に断面図を示す。断面図は、図の上から順に、平面図の線分A-A、B-B、C-C、D-Dで切断した断面図である。添付図において締結構造は省略する。

[0051] 図2（a）を参照すると、微細溝アレイ基板（20）は、液体分配用部品（30）と対面する下面に微細流路（16）の列を有する。微細流路（16）の列は、平行に配列された16本の直線状微細溝（16）、具体的には、矩形断面（幅100 μ m、高さ100 μ m）形状を有する長さ13mmの直線状微細溝（16）を有し、隣り合う溝同士の間隔は100 μ mである。微細溝アレイ基板（20）と液体分配用部品（30）の第1部材（31）とを液密に結合すると、微細溝アレイ基板（20）に形成されている微細溝（16-1）の頂面は、第1部材（31）の上面によって封鎖されて、マイクロ流路（16）を形成する。

[0052] 液体分配用部品（30）の第1部材（31）は、図2（a）（b）の左から順に第1分散相供給用スリット（11）、第2分散相供給用スリット（12）、連続相供給用スリット（13）、及び生成物排出用スリット（14）の4つのスリットを有する。本発明の定義では、第2分散相供給用スリット（12）が第1スリット、連続相供給用スリット（13）は第2液体輸送口の好ましい例としての第2スリットである。各スリットは、第1部材（31）の主表面において、長手幅（長さ）5mm、短手幅（幅）500 μ mのスリット終端部（開口）を有し、スリットの間隔は3mmである。各スリ

ットは第1部材(31)を厚さ方向に貫通する平板状(以下、単に板状ともいう。)の空間(3次元スリット)を形成している。本発明において、第1スリット(12)は必須であるが、第1分散相供給用スリット(11)、連続相供給用スリット(13)及び生成物排出用スリット(14)はスリットである必要はなく、第1分散相供給口、連続相供給口及び生成物排出口(いずれも液体輸送口)であればよく、例えば、第1部材(31)の主表面を終端として開口し、複数のマイクロ流路(16)に接続される大きな穴などであってよい。

[0053] 微細溝アレイ基板(20)の微細流路(16)の列の長手方向と、第1部材(31)のスリット(11, 12, 13, 14)の長手方向とは、互いに垂直に交差するように配置されている。

[0054] 液体分配用部品(30)の下部の第2部材(32)は、第1分散相供給口(11-1)、第2分散相供給口(12-1)、連続相供給口(13-1)、及び生成物排出口(14-1)を有し、それぞれ、第1分散相供給用スリット(11)、第2分散相供給用スリット(12)、連続相供給用スリット(13)、及び生成物排出用スリット(14)と流体接続されている。第1分散相供給口(11-1)、第2分散相供給口(12-1)、連続相供給口(13-1)、及び生成物排出口(14-1)は、上面に各スリットの端面と一致する位置に4つの円筒形縦方向穴を有し、第2部材(32)の4つの側面まで延在する円筒形横方向穴に空間として連続している。第2部材(32)の4つの側面に開口する円筒形横方向穴は、外部液体供給用又は液体排出用部材と液密に接続するために雌ねじ構造を有してよい。

[0055] ここで、第1分散相供給用スリット(11)、第2分散相供給用スリット(12)、連続相供給用スリット(13)、及び生成物排出用スリット(14)は、機能的には、それぞれ、第1分散相供給口(11-1)、第2分散相供給口(12-1)、連続相供給口(13-1)、及び生成物排出口(14-1)の延長部あるいは終端であり、第1分散相供給口(11-1)、第2分散相供給口(12-1)、連続相供給口(13-1)、及び生成物排出

口（14-1）の一部を構成するものである。本発明においては、第1分散相供給用スリット（11）、第2分散相供給用スリット（12）、連続相供給用スリット（13）、及び生成物排出用スリット（14）を含めて、第1分散相供給口（11-1）、第2分散相供給口（12-1）、連続相供給口（13-1）、及び生成物排出口（14-1）である。以下の実施態様では、図面又は文脈によって、第1分散相供給用スリット（11）、第2分散相供給用スリット（12）、連続相供給用スリット（13）、及び生成物排出用スリット（14）を除いて、狭義の意味で、第1分散相供給口（11-1）、第2分散相供給口（12-1）、連続相供給口（13-1）、及び生成物排出口（14-1）と表示し、又は称することがある。

[0056] 実施態様1では、複数のマイクロ流路（16）に対して、それぞれ、第1分散相供給用スリット（11）から第1分散相（1）が供給され、第2分散相供給用スリット（12）から第2分散相（2）が供給されて、次に説明するように、第1スリット（12）及び第2スリット（13）の間のマイクロ流路（16）において二相並行連続流（4）が形成され、連続相供給用スリット（13）から連続相（3）が供給されて、マイクロ流路（16）の第2スリット（13）との接合箇所付近においてコアシェル型又はヤヌス型などの二相液滴（5）が生成し、その二相液滴（5）が生成物排出用スリット（14）及び生成物排出口（14-1）を通過して排出される。

[0057] 図3（a）は、図2のマイクロ二相液滴生成デバイス（100）を、1本のマイクロ流路（16）の長手方向に沿って切断した縦断面の一部模式図であり、二相液滴が生成される様子を模式的に示している。図3（a）において、微細溝アレイ基板（20）の液体分配用部品（30）との接合面（基準面）の上に、マイクロ流路（16）が形成されており、スリット（12、13）は、接合面（基準面）から垂直に下方向に延在している。

[0058] マイクロ流路（16）に対して、図3（a）の左から第1分散相（1）が供給されて第1分散相（1）の流れが形成され、第1スリット（12）から第2分散相（2）が供給されて第2分散相（2）の流れが形成されると、マ

マイクロ流路（１６）と第１スリット（１２）の接続箇所において、第１分散相（１）の流れと第２分散相（２）の流れとが出会い、第１スリット（１２）と第２スリット（１３）の間のマイクロ流路（１６）において、第１分散相（１）と第２分散相（２）の二相並行連続流（４）が形成される。二相並行連続流（４）とは、第１分散相（１）と第２分散相（２）の二相がお互いに完全には混じり合わず、分離した連続流をそれぞれ形成していることをいう。二相並行連続流（４）は、マイクロ流路（１６）の横断面において、第１分散相（１）と第２分散相の二相がお互いに完全には混じり合わずに分離した二相構造を有する。

[0059] 複数のマイクロ流路（１６）に対して、連続相供給用スリット（１３）から連続相（３）が供給されると、複数のマイクロ流路（１６）の連続相供給用スリット（１３）との接続箇所付近において連続相（３）の流れを駆動力として二相並行連続流（４）の流れがせん断されて、第１分散相（１）と第２分散相（２）の二相がコアシェル型又はヤヌス型などの構造を有する二相液滴（５）を生成する。図３（ａ）では、説明のために、コアシェル型液滴（５－２）及びヤヌス型液滴（５－１）の２種類の二相液滴を描いているが、実際にはコアシェル型液滴（５－２）又はヤヌス型液滴（５－１）などの一つの二相液滴（５）が生成する。二相液滴（５）がコアシェル型液滴（５－２）又はヤヌス型液滴（５－１）などのどれになるか、またコアシェル型液滴（５－２）が生成する場合に第１分散相（１）と第２分散相（２）のいずれがコアおよびシェルになるかは、主に第１分散相（１）、第２分散相（２）、及び連続相（３）の相互の界面張力の関係などによって決まる。また、図３（ａ）において、コアシェル型液滴（５－２）は第２分散相（２）をコア、第１分散相（１）をシェルとするコアシェル型液滴（５－２）を示しているが、第１分散相（１）をコア、第２分散相（２）をシェルとするコアシェル型液滴であり得る。

[0060] 二相液滴（５）を含む生成物は、生成物排出用スリット（１４）及び生成物排出口（１４－１）を通過して排出される。

[0061] (実施態様2)

本発明の実施態様2のマイクロ二相液滴生成デバイス(100)は、実施態様1のマイクロ二相液滴生成デバイス(100)と類似するが、実施態様1における連続相供給用スリットと生成物排出用スリットとは相互に入れ替えられ、連続相供給口と生成物排出口とは相互に入れ替えられる点で異なる。その結果、図2(a)(b)において、スリット(13)が生成物排出用スリットであり、スリット(14)が連続相供給用スリットであり、液体輸送口(13-1)が生成物排出口であり、液体輸送口(14-1)が連続相供給口である。

[0062] 実施態様2では、マイクロ流路(16)に対して、それぞれ、第1分散相供給用スリット(11)から第1分散相(1)が供給され、第2分散相供給用スリット(12)から第2分散相(2)が供給されて、次に説明するように、第1スリット(12)及び第2スリット(13)の間のマイクロ流路(16)において二相並行連続流(4)が形成され、連続相供給用スリット(14)から連続相(3)が供給されて、マイクロ流路(16)の第2スリット(13)との接合箇所付近においてコアシェル型又はヤヌス型などの二相液滴(5-1, 5-2)が生成し、その二相液滴(5-1, 5-2)が生成物排出用スリット(13)及び生成物排出口(13-1)を通過して排出される。

[0063] 図3(b)は、実施態様2のマイクロ二相液滴生成デバイス(100)を、1本のマイクロ流路(16)の長手方向に沿って切断した縦断面の一部模式図であり、二相液滴が生成される様子を模式的に示している。図3(b)において、微細溝アレイ基板(20)の、液体分配用部品(30)の第1部材(31)との接合面(基準面)の上に、マイクロ流路(16)が形成されており、スリット(12, 13)は、接合面(基準面)から垂直に下方方向に延在している。

[0064] 複数のマイクロ流路(16)に対して、図3(b)の左から第1分散相(1)が供給されて第1分散相(1)の流れが形成され、第1スリット(12

)から第2分散相(2)が供給されて第2分散相(2)の流れが形成されると、マイクロ流路(16)と第1スリット(12)の接続箇所において、第1分散相(1)の流れと第2分散相(2)の流れとが出会い、マイクロ流路(16)の第1スリット(12)及び第2スリット(13)の間のマイクロ流路(16)において、第1分散相(1)と第2分散相(2)の二相並行連続流(4)が形成される。

[0065] 複数のマイクロ流路(16)に対して、連続相供給用スリット(14)から連続相(3)が供給されると、生成物排出用スリット(13)のマイクロ流路(16)との接続箇所付近において連続相(3)の流れを駆動力として二相並行連続流(4)の流れがせん断されて、第1分散相(1)と第2分散相(2)の二相がコアシェル型又はヤヌス型などの構造を有する二相液滴(5)を生成することができる。図3(b)では、説明のために、コアシェル型液滴(5-2)及びヤヌス型液滴(5-1)の2種類の二相液滴を描いているが、実際にはコアシェル型液滴(5-2)又はヤヌス型液滴(5-1)などの一つの二相液滴(5)が生成する。また、図3(b)において、コアシェル型液滴(5-2)は第2分散相(2)をコア、第2分散相(1)をシェルとするコアシェル型液滴(5-2)を示しているが、第2分散相(1)をコア、第2分散相(2)をシェルとするコアシェル型液滴であり得る。

[0066] 二相液滴(5)を含む生成物は、生成物排出用スリット(13)及び生成物排出口(13-1)を通過して排出される。

[0067] 本発明の実施態様1~2において、液体分配用部品(30)に接合される微細溝(16)を有する部品(20)の溝形状の例を図4に示す。図4(a)は、4つのスリット(破線)を直線状マイクロ流路(実線)の列で垂直に橋渡ししている場合であり、図4(b)は4つのスリット(破線)を直線状マイクロ流路(実線)の列で斜めに交わるように橋渡ししている場合であり、図4(c)は4つのスリットを橋渡しするマイクロ流路(実線)の幅が連続的に変化している場合である。なお、微細溝の幅は不連続的に変化してもよい。図4(d)~(f)は、挟まれたスリット(破線)と両脇のスリット(

破線)を接続するマイクロ流路(実線)が分割されている場合であり、図4(d)は位置とサイズが合っている場合、図4(e)は位置がずれている場合、図4(f)は数の対応が1:1でない場合、を示す。また図4(g)は橋渡しするマイクロ流路(実線)の列が一部互いに接合されている場合を示す。図4(a)~図4(g)の特徴は任意に組み合わせてもよい。

[0068] 本発明の実施態様1~2において、微細溝アレイ基板(20)は、例えばSi基板上にネガ型フォトリソグレイドであるSU-8(日本化薬株式会社)を用いて作製した鋳型からシリコン樹脂(PDMS:ポリジメチルシロキサン)にパターンを転写して作製することができる。液体分配用部品(20)は、例えばステンレス鋼素材(SUS304)を機械加工して作製することができる。また、液体分配用部品(20)のスリット状の貫通孔は、例えばワイヤ放電加工により作製することができる。

[0069] 本発明の実施態様1~2において、例えば、シリコンオイル(SO)等の第1分散相、1,6-ヘキサジオールジアクリレート(HDDA)等の第2分散相、及びポリビニルアルコール(PVA)水溶液等の連続相を送液することにより、コアシェル型二相液滴が生成される。また、1,6-ヘキサジオールジアクリレート(HDDA)等の第1分散相、1wt%の界面活性剤を添加したシリコンオイル等の第2分散相(SO+界面活性剤)等の第2分散相、及びポリビニルアルコール(PVA)水溶液等の連続相を送液することにより、ヤヌス型二相液滴が生成される。分散相と連続相の送液には、たとえばガラスシリンジおよびシリンジポンプを用いることができる。液滴生成の観察および生成液滴のサイズ測定には、例えば正立型光学顕微鏡および高速度ビデオカメラを組み合わせて使用するのが好適である。

[0070] (実施態様3)

実施態様3のマイクロ二相液滴生成デバイス(100)は、図5(a)(b)に示す如く、上から、微細溝密封用の蓋(21)と、液体分配用部品(33)の第1部材(34)及び第2部材(35)とを有する。密封用の蓋(21)は、例えば、幅20mm、長さ20mm、高さ4mmの寸法を有する

。第1部材(34)及び第2部材(35)は、それぞれ、例えば、幅30mm、長さ33mm、高さ8mmの寸法を有する。これらの部品及び部材は、互いに位置合わせして、ボルトなどの締結構造によって、相互間を液密に結合される。図において締結構造は省略する。

[0071] 図5(a)は、マイクロ二相液滴生成デバイス(100)の分解展開斜視図であり、上から順に密封用の蓋(21)、液体分配用部品(33)の第1部材(34)及び第2部材(35)である。図5(b)は、マイクロ二相液滴生成デバイス(100)の密封用の蓋(21)、液体分配用部品(33)の第1部材(34)及び第2部材(35)の平面図と、平面図の右側及び下側に断面図を示す。断面図は、図の上から順に、平面図の線分A-A, B-B, C-C, D-Dで切断した断面図である。

[0072] 図5(a)(b)を参照すると、密封用の蓋(21)は、液体分配用部品(33)と対面する下面は微細流路を有していない平坦な面である。

[0073] 液体分配用部品(33)の第1部材(34)は、図5(a)(b)の左から順に第1分散相供給用スリット(11)、第2分散相供給用スリット(12)、連続相供給用スリット(13)、及び生成物排出用スリット(14)の4つのスリットを有する。本発明の定義では、第2分散相供給用スリット(12)が第1スリット、連続相供給用スリット(13)は連続相供給用液体輸送口の好ましい例としての第2スリットである。各スリットは、第1部材(34)の主表面において、長手幅(長さ)5mm、短手幅(幅)500 μ mのスリット終端部(開口)を有し、スリットの間隔は3mmである。各スリットは第1部材(34)を厚さ方向に貫通する板状の空間(3次元スリット)を形成している。

[0074] 液体分配用部品(33)の第1部材(34)は、第1分散相供給用スリット(11)、第2分散相供給用スリット(12)、連続相供給用スリット(13)、及び生成物排出用スリット(14)の各スリットの間、第1分散相供給用スリット(11)から生成物排出用スリット(14)まで延在し、それぞれ矩形断面(幅100 μ m、深さ100 μ m)形状を有する直線状微

細溝（16-1）を合計16本有し、各スリットの間16本の直線状微細溝（16-1）のそれぞれどうしは、第2分散相供給用スリット（12）、連続相供給用スリット（13）を超えて1直線上に形成されている。微細流路（16-1）の列の長手方向と、第1部材（34）のスリット（11, 12, 13, 14）の長手方向とは互いに垂直に交差している。

[0075] 液体分配用部品（33）の微細溝（16-1）が形成されている第1部材（34）の頂面に、密封用の蓋（21）を液密に結合すると、微細溝（16-1）は封鎖されて、マイクロ流路（16-1）を形成する。

[0076] 本発明において、第1スリットは必須であるが、第1分散相供給用スリット（11）、連続相供給用スリット（13）及び生成物排出用スリット（14）はスリットである必要はなく、第1分散相供給口、連続相供給口及び生成物排出口（液体輸送口）であればよく、例えば、第1部材（34）の主表面に形成されている複数のマイクロ流路（16-1）に接続される大きな穴などであってよい。

[0077] 液体分配用部品（33）の下部の第2部材（35）は、第1分散相供給口（11-1）、第2分散相供給口（12-1）、連続相供給口（13-1）、及び生成物排出口（14-1）を有し、それぞれ、第1分散相供給用スリット（11）、第2分散相供給用スリット（12）、連続相供給用スリット（13）、及び生成物排出用スリット（14）と流体接続されている。第1分散相供給口（11-1）、第2分散相供給口（12-1）、連続相供給口（13-1）、及び生成物排出口（14-1）は、上面に各スリットの端面と一致する位置に4つの円筒形縦方向穴を有し、第2部材（35）の4つの側面まで延在する円筒形横方向穴に空間として連続している。第2部材（35）の4つの側面に開口する円筒形横方向穴は、外部液体供給用又は液体排出用部材と液密に接続するために雌ねじ構造を有してよい。

[0078] ここで、第1分散相供給用スリット（11）、第2分散相供給用スリット（12）、連続相供給用スリット（13）、及び生成物排出用スリット（14）は、機能的には、それぞれ、第1分散相供給口（11-1）、第2分散

相供給口（12-1）、連続相供給口（13-1）、及び生成物排出口（14-1）の延長部あるいは終端であり、第1分散相供給口（11-1）、第2分散相供給口（12-1）、連続相供給口（13-1）、及び生成物排出口（14-1）の一部を構成するものである。本発明の定義においては、第1分散相供給用スリット（11）、第2分散相供給用スリット（12）、連続相供給用スリット（13）、及び生成物排出用スリット（14）を含めて、第1分散相供給口（11-1）、第2分散相供給口（12-1）、連続相供給口（13-1）、及び生成物排出口（14-1）である。以下の実施態様では、図面又は文脈によって、第1分散相供給用スリット（11）、第2分散相供給用スリット（12）、連続相供給用スリット（13）、及び生成物排出用スリット（14）を除いて、狭義の意味で、第1分散相供給口（11-1）、第2分散相供給口（12-1）、連続相供給口（13-1）、及び生成物排出口（14-1）と表示し、又は称することがある。

[0079] 実施態様3では、マイクロ流路（16-1）に対して、それぞれ、第1分散相供給用スリット（11）から第1分散相（1）が供給され、第2分散相供給用スリット（12）から第2分散相（2）が供給されて、次に説明するように、第1スリット（12）及び第2スリット（13）の間のマイクロ流路（16-1）において二相並行連続流（4）が形成され、連続相供給用スリット（13）から連続相（3）が供給されて、マイクロ流路（16-1）の第2スリット（13）との接合箇所付近においてコアシェル型又はヤヌス型などの二相液滴（5-1, 5-2）が生成し、その二相液滴（5-1, 5-2）が生成物排出用スリット（14）及び生成物排出口（14-1）を通過して排出される。

[0080] 図6（a）は、マイクロ二相液滴生成デバイス（100）を、1本のマイクロ流路（16-1）の長手方向に沿って切断した縦断面の一部模式図であり、二相液滴（5）が生成される様子を模式的に示している。図6（a）において、密封用の蓋（21）と液体分配用部品（33）の接合面の下方方向に、微細溝に基づくマイクロ流路（16-1）が形成されており、マイクロ流

路（16-1）、すなわち、微細溝（16-1）の底面（下面）をつなぐ平面を基準面として、スリット（12、13）は基準面から垂直に下方方向に延在している。

[0081] 複数のマイクロ流路（16-1）に対して、図6（a）の左から第1分散相（1）が供給されて第1分散相（1）の流れが形成され、第1スリット（12）から第2分散相（2）が供給されて第2分散相（2）の流れが形成されると、マイクロ流路（16-1）と第1スリット（12）の接続箇所において、第1分散相（1）の流れと第2分散相（2）の流れとが出会い、マイクロ流路（16-1）の第1スリット（12）及び第2スリット（13）の間のマイクロ流路（16-1）において、第1分散相（1）と第2分散相（2）の二相並行連続流（4）が形成される。

[0082] 複数のマイクロ流路（16-1）に対して、連続相供給用スリット（13）から連続相（3）が供給されると、マイクロ流路（16-1）の連続相供給用スリット（13）との接続箇所付近において連続相（3）の流れを駆動力として二相並行連続流（4）の流れがせん断されて、第1分散相（1）と第2分散相（2）の二相がコアシェル型又はヤヌス型構造などを有する二相液滴（5）を生成することができる。図6（a）では、説明のために、コアシェル型液滴（5-2）及びヤヌス型液滴（5-1）の2種類の二相液滴を描いているが、実際にはコアシェル型液滴（5-2）又はヤヌス型液滴（5-1）などの一つの二相液滴が生成する。また、図6（a）において、コアシェル型液滴（5-2）は第2分散相（2）をコア、第1分散相（1）をシェルとするコアシェル型液滴（5-2）を示しているが、第1分散相（1）をコア、第2分散相（2）をシェルとするコアシェル型液滴であり得る。

[0083] 二相液滴（5）を含む生成物は、生成物排出用スリット（14）及び生成物排出口（14-1）を通過して排出される。

[0084] （実施態様4）

実施態様4のマイクロ二相液滴生成デバイス（100）は、実施態様3のマイクロ二相液滴生成デバイス（100）と類似するが、実施態様1におけ

る連続相供給用スリットと生成物排出用スリットとは相互に入れ替えられ、連続相供給口（13-1）と生成物排出用スリットと生成物排出口とは相互に入れ替えられる点で異なる。その結果、図5（a）（b）において、スリット（13）が生成物排出用スリットであり、スリット（14）が連続相供給用スリットであり、液体輸送口（13-1）が生成物排出口であり、液体輸送口（14-1）が連続相供給口である。

[0085] 実施態様4では、マイクロ流路（16-1）に対して、それぞれ、第1分散相供給用スリット（11）から第1分散相（1）が供給され、第2分散相供給用スリット（12）から第2分散相（2）が供給されて、次に説明するように、第1スリット（12）及び第2スリット（13）の間のマイクロ流路（16-1）において二相並行連続流（4）が形成され、連続相供給口（14-1）及び連続相供給用スリット（14）から連続相（3）が供給されて、マイクロ流路（16-1）の第2スリット（13）との接合箇所付近においてコアシェル型又はヤヌス型などの二相液滴（5-1, 5-2）が生成し、その二相液滴（5-1, 5-2）が生成物排出用スリット（13）及び生成物排出口（13-1）を通過して排出される。

[0086] 図6（b）は、実施態様4のマイクロ二相液滴生成デバイス（100）を、1本のマイクロ流路（16-1）の長手方向に沿って切断した縦断面の一部模式図であり、二相液滴が生成される様子を模式的に示している。図6（b）において、密封用の蓋（21）と液体分配用部品（33）の第1部材（34）との接合面の下方向に、微細溝に基づくマイクロ流路（16-1）が形成されており、マイクロ流路（16-1）、すなわち、微細溝の底面（下面）をつなぐ仮想平面を基準面として、スリット（12、13）は基準面から垂直に下方向に延在している。

[0087] マイクロ流路（16-1）に対して、図6（b）の左から第1分散相（1）が供給されて第1分散相（1）の流れが形成され、第1スリット（12）から第2分散相（2）が供給されて第2分散相（2）の流れが形成されると、マイクロ流路（16-1）と第1スリット（12）の接続箇所において、

第1分散相(1)の流れと第2分散相(2)の流れとが出会い、マイクロ流路(16-1)の第1スリット(12)及び第2スリット(13)の間のマイクロ流路(16-1)において、第1分散相(1)と第2分散相(2)の二相並行連続流(4)が形成される。

[0088] マイクロ流路(16-1)に対して、連続相供給用スリット(14)から連続相(3)がマイクロ流路(16-1)に供給されると、連続相供給用スリット(14)のマイクロ流路(16-1)との接続箇所付近において連続相(3)の流れを駆動力として二相並行連続流(4)の流れがせん断されて、第1分散相(1)と第2分散相(2)の二相がコアシェル型又はヤヌス型などの構造を有する二相液滴(5-1, 5-2)を生成することができる。図6(b)では、説明のために、コアシェル型液滴(5-2)及びヤヌス型液滴(5-1)の2種類の二相液滴を描いているが、実際にはコアシェル型液滴(5-2)又はヤヌス型液滴(5-1)などの一つの二相液滴が生成する。また、図6(b)において、コアシェル型液滴(5-2)は第2分散相(2)をコア、第1分散相(1)をシェルとするコアシェル型液滴(5-2)を示しているが、第1分散相(1)をコア、第2分散相(2)をシェルとするコアシェル型液滴であり得る。

[0089] 二相液滴(5)を含む生成物は、生成物排出用スリット(13)及び生成物排出口(13-1)を通過して排出される。

[0090] 本発明の実施態様3~4において、液体分配用部品(33)に加工される微細溝の形状の例を図7に示す。図7(a)は、3本のスリットを垂直に交わる直線状微細溝で橋渡しする場合、図7(b)は斜めに交わる直線状微細溝で橋渡しする場合、図7(c)は橋渡しする微細溝の幅が連続的に変化している場合である。なお、微細溝の幅は不連続的に変化してもよい。図7(d)は橋渡しする微細溝の位置にずれがある場合、図7(e)は橋渡しする微細溝の数の対応が1:1でない場合である。

[0091] 本発明の実施態様3~4において、密封用の蓋(21)は、例えばシリコーン樹脂(PDMS:ポリジメチルシロキサン)やアクリル樹脂、ガラス等

の透明部材を用いて作製することが望ましい。液体分配装置は、例えばステンレス鋼素材（SUS304）を機械加工して作製する。また、液体分配装置のスリット状の貫通孔は、例えばワイヤ放電加工により作製することができる。また、スリット同士を橋渡しする微細溝は機械切削加工、レーザ加工、エッチング等にて作製することができる。

[0092] 本発明の実施態様3～4において、例えば、シリコンオイル（SO）等の第1分散相、1，6-ヘキサジオールジアクリレート（HDDA）等の第2分散相、及びポリビニルアルコール（PVA）水溶液等の連続相を送液することにより、コアシェル型二相液滴が生成される。また、1，6-ヘキサジオールジアクリレート（HDDA）等の第1分散相、1wt%の界面活性剤を添加したシリコンオイル等の第2分散相（SO+界面活性剤）等の第2分散相、及びポリビニルアルコール（PVA）水溶液等の連続相を送液することにより、ヤヌス型二相液滴が生成される。分散相と連続相の送液には、たとえばガラスシリンジおよびシリンジポンプを用いることができる。液滴生成の観察および生成液滴のサイズ測定には、例えば正立型光学顕微鏡および高速度ビデオカメラを組み合わせ使用するのが好適である。

[0093] （実施態様5）

実施態様5のマイクロ二相液滴生成デバイス（100）は、微細溝（16-2）が形成されている微細溝アレイ基板（22）と、3つのスリット（11R，12R，13R）及び円筒形穴（14H）を有する液体分配用部品（41）とによって構成されている（図8（a）（b））。微細溝アレイ基板（22）に形成されている微細溝（16-2）は、中心軸線から半径方向に放射状に形成されている。液体分配用部品（41）に形成されている3つのスリット（11R，12R，13R）は同心の円環状であり、その中心軸線に円筒形穴（14H）を有している。

[0094] 液体分配用部品（41）は、4つの部材より構成される（図8（a）（b））。液体分配用部品（41）は、微細溝（16-2）を有する部品（22）の下部に配置される、第1分散相供給口（11-1）を備えた最上部の第

1部材(41-1)と;第2分散相供給口(12-1)を備え、且つ第1部材(41-1)と組み合わせることで第1分散相(1)を供給するための円環状スリット(11R)を形成する上から2段目の第2部材(41-2)と;連続相供給口(13-1)を備え、且つ第2部材(41-2)と組み合わせることで第2分散相(2)を供給するための円環状スリット(12R)を形成する上から3段目の第2部材(41-2)と;第3部材(41-3)と組み合わせることで連続相(3)を供給するための円環状スリット(13R)を形成し且つ中央の生成物排出用円筒形孔(14H)と排出口(14-1)を備える上から4段目の第4部材(41-4);を具備する(図8(a)(b))。

[0095] 液体分配用部品(41)の第1~第4部材を組合せた時の断面斜視図を図8(a)に示す。供給された第1分散相(1)、第2分散相(2)、連続相(3)は下層から円環状スリット(11R, 12R, 13R)を流れて、液体分配用部品(41)の上部へと供給される。すなわち、第1分散相(1)は、第1部材(41-1)において第1分散相供給口(11-1)から第1分散相供給用の円環状スリット(11R)に供給され、第2分散相(2)は、第2部材(41-2)において第2分散相供給口(12-1)から第2分散相供給用の円環状スリット(12R)に供給され、連続相(3)は、第3部材(41-3)において連続相供給口(13-1)から連続相供給用の円環状スリット(13R)に供給され、第1分散相(1)、第2分散相(2)および連続相(3)は各スリット内をそれぞれ上方に送液される。

[0096] ここでは、円環状スリット(11R, 12R, 13R)及び円筒形孔(14H)の形状を強調するために、円環状スリット(11R, 12R, 13R)及び円筒形孔(14H)を除く部分を第1分散相供給口(11-1)、第2分散相供給口(12-1)、連続相供給口(13-1)及び排出口(14-1)と表示しているが、本開示において、円環状スリット(11R, 12R, 13R)及び円筒形孔(14H)は、機能的には、第1分散相供給口(11-1)、第2分散相供給口(12-1)、連続相供給口(13-1)及

び排出口（14-1）の一部であることは、前述のとおりである（以下の態様において円環状スリット及び円筒形孔に関して第1分散相供給口、第2分散相供給口、連続相供給口及び排出口との関係は同様であるが、繰り返して記載しない。）。

[0097] 液体分配用部品（41）上の3つのスリット（すなわち第1分散相供給用スリット（11R）、第2分散相供給用スリット（12R）および連続相供給用スリット（13R））、及び排出口（14-1）の一部である円筒形孔（14H）と、微細溝（16-2）を有する部品（22）とを接合したものを図8（a）に示す。図8（a）では、外側の円環状スリット（11R）に第1分散相が供給され、中間の円環状スリット（12R）に第2分散相が供給され、内側のスリット（13R）に連続相（3）が供給される。

[0098] 第1分散相（1）および第2分散相（2）は微細溝（16-2）から形成されたマイクロ流路（16-2）に供給され、第1分散相供給用スリット（11R）と第2分散相供給用スリット（12R）とを結ぶマイクロ流路（16-2）において第1分散相（1）および第2分散相（2）の二相並行連続流（4）を形成する。連続相（3）はマイクロ流路（16-2）に供給され、二相並行連続流（4）が流れるマイクロ流路（16-2）と連続相供給用スリット（13R）との接続箇所付近において生成した二相液滴（5）がマイクロ流路（16-2）を経て中央の排出用円筒形孔（14H）から排出される。

[0099] 図9（a）は、装置内で二相液滴が生成される様子を表したものである。複数のマイクロ流路（16-2）に対して、図9（a）の左から第1分散相（1）が供給されて第1分散相（1）の流れが形成され、第1スリット（12R）から第2分散相（2）が供給されて第2分散相（2）の流れが形成されると、マイクロ流路（16-2）と第1スリット（12R）の接続箇所において、第1分散相（1）の流れと第2分散相（2）の流れとが出会い、マイクロ流路（16-2）の第1スリット（12R）及び第2スリット（13R）の間のマイクロ流路（16-2）において、第1分散相（1）と第2分

散相（２）の二相並行連続流（４）が形成される。

[0100] 複数のマイクロ流路（１６－２）に対して、連続相供給用スリット（１３Ｒ）から連続相（３）が供給されると、マイクロ流路（１６－２）の連続相供給用スリット（１３Ｒ）との接続箇所付近において連続相（３）の流れを駆動力として二相並行連続流（４）の流れがせん断されて、第１分散相（１）と第２分散相（２）の二相がコアシェル型又はヤヌス型構造などを有する二相液滴（５－１，５－２）を生成することができる。図９（ａ）では、説明のために、コアシェル型液滴（５－２）及びヤヌス型液滴（５－１）の２種類の二相液滴を描いているが、実際にはコアシェル型液滴（５－２）又はヤヌス型液滴（５－１）などの一つの二相液滴が生成する。また、図９（ａ）において、コアシェル型液滴（５－２）は第２分散相（２）をコア、第１分散相（１）をシェルとするコアシェル型液滴（５－２）を示しているが、第１分散相（１）をコア、第２分散相（２）をシェルとするコアシェル型液滴であり得る。

[0101] 二相液滴（５）を含む生成物は、円筒形孔（１４Ｈ）及び生成物排出口（１４－１）を通過して排出される。

[0102] （実施態様６）

実施態様６のマイクロ二相液滴生成デバイス（１００）は、実施態様５のマイクロ二相液滴生成デバイス（１００）と類似するが、実施態様５における連続相供給用スリットと生成物排出用の円筒形孔とは相互に入れ替えられ、連続相供給口と生成物排出口とは相互に入れ替えられる点で異なる。その結果、図８（ａ）（ｂ）において、スリット（１３Ｒ）が生成物排出用スリットであり、円筒形孔（１４Ｈ）が連続相供給用の円筒形孔（開口）であり、液体輸送口（１３－１）が生成物排出口であり、液体輸送口（１４－１）が連続相供給口である。

[0103] 実施態様６では、マイクロ流路（１６－２）に対して、それぞれ、第１分散相供給用スリット（１１Ｒ）から第１分散相（１）が供給され、第２分散相供給用スリット（１２Ｒ）から第２分散相（２）が供給されて、次に説明

するように、第1スリット（12R）及び第2スリット（13R）の間のマイクロ流路（16-2）において二相並行連続流（4）が形成され、連続相供給口（14-1）及び連続相供給用の円筒形孔（14H）から連続相（3）が供給されて、マイクロ流路（16-2）の第2スリット（13）との接合箇所付近においてコアシェル型又はヤヌス型二相液滴（5）が生成し、その二相液滴（5）が生成物排出用スリット（13R）及び生成物排出口（13-1）を通過して排出される。

[0104] 図9（b）は、実施態様6のマイクロ二相液滴生成デバイス（100）を、1本のマイクロ流路（16-2）の長手方向に沿って切断した縦断面の一部模式図であり、二相液滴が生成される様子を模式的に示している。図9（b）において、微細溝アレイ基板（22）と液体分配用部品（41）の接合面（基準面）の上に、マイクロ流路（16-2）が形成されており、スリット（12R、13R）は、基準面から垂直に下方向に延在している。

[0105] マイクロ流路（16-2）に対して、図9（b）の左から第1分散相（1）が供給されて第1分散相（1）の流れが形成され、第1スリット（12R）から第2分散相（2）が供給されて第2分散相（2）の流れが形成されると、マイクロ流路（16-2）と第1スリット（12R）の接続箇所において、第1分散相（1）の流れと第2分散相（2）の流れとが出会い、マイクロ流路（16-2）の第1スリット（12R）及び第2スリット（13R）の間のマイクロ流路（16-2）において、第1分散相（1）と第2分散相（2）の二相並行連続流（4）が形成される。

[0106] マイクロ流路（16-2）に対して、連続相供給用の円筒形孔（14H）から連続相（3）がマイクロ流路（16-2）に供給されると、排出用スリット（13R）のマイクロ流路（16-2）との接続箇所付近において連続相（3）の流れを駆動力として二相並行連続流（4）の流れがせん断されて、第1分散相（1）と第2分散相（2）の二相がコアシェル型又はヤヌス型構造などを有する二相液滴（5-1、5-2）を生成することができる。図12では、説明のために、コアシェル型液滴（5-2）及びヤヌス型液滴（

5-1) の2種類の二相液滴を描いているが、実際にはコアシェル型液滴 (5-2) 又はヤヌス型液滴 (5-1) などの一つの二相液滴が生成する。また、図9 (b) において、コアシェル型液滴 (5-2) は第2分散相 (2) をコア、第1分散相 (1) をシェルとするコアシェル型液滴 (5-2) を示しているが、第1分散相 (1) をコア、第2分散相 (2) をシェルとするコアシェル型液滴であり得る。

[0107] 二相液滴 (5) を含む生成物は、生成物排出用スリット (13R) 及び生成物排出口 (13-1) を通って排出される。

[0108] (実施態様7)

実施態様7のマイクロ二相液滴生成デバイス (100) は、図10 (a) (b) に示す如く、3つのスリット (11R, 12R, 13R) 及び円筒形穴 (14H) を有する液体分配用部品 (42) の頂面に、複数の微細溝 (16-2) の列が形成されており、その複数の微細溝 (16-2) の頂面を蓋 (23) によって密封することでマイクロ流路 (16-2) が形成される。微細溝 (16-2) の密封用の蓋 (23) の下面は平坦な平面である。液体分配用部品 (42) に形成されている微細溝 (16-2) は、中心軸線から半径方向に放射状に形成されている。一方、液体分配用部品 (42) に形成されている3つのスリット (11R, 12R, 13R) は同心の円環状であり、その中心軸線に円筒形穴 (14H) を有している。

[0109] 液体分配用部品 (42) は、4つの部材より構成される (図10 (a) (b))。液体分配用部品 (42) は、スリット (11R, 12R, 13R) と排出用円筒形孔 (14H) と微細溝 (16-3) を密封するための平板の蓋 (23) の下部に配置される、第1分散相供給口 (11-1) を備えた最上部の第1部材 (42-1) と；第2分散相供給口 (12-1) を備え、且つ前記第1部材 (42-1) と組み合わせることで第1分散相 (1) を供給するための円環状スリット (11R) を形成する上から2段目の第2部材 (42-2) と；連続相供給口 (13-1) を備え、且つ前記第2部材 (42-2) と組み合わせることで第2分散相 (2) を供給するための円環状スリ

ット（12R）を形成する上から3段目の第2部材（42-2）と；前記第3部材（42-3）と組み合わせることで連続相（3）を供給するための円環状スリット（13R）を形成し且つ中央に排出用円筒形孔（14H）を備える上から4段目の第4部材（42-4）；を具備する。

[0110] また、4つの部材を組み合わせることで形成された円環状スリット（11R、12R、13R）の間および、円環状スリット（13R）と円筒形孔（14H）の間には微細溝（16-3）が加工されている。

[0111] 液体分配用部品（42）の第1～第4部材を組合せた時の断面斜視図を図10（a）に示す。供給された第1分散相（1）、第2分散相（2）および連続相（3）は下層から円環状スリット（11R、12R、13R）を流れて、液体分配用部品（42）の上部へと供給される。すなわち、第1分散相（1）は、第1部材（42-1）において第1分散相供給口（11-1）から第1分散相供給用の円環状スリット（11R）に供給され、第2分散相（2）は、第2部材（42-2）において第2分散相供給口（12-1）から第2分散相供給用の円環状スリット（12R）に供給され、連続相（3）は、第3部材において連続相供給口（13-1）から連続相供給用の円環状スリット（13R）に供給され、第1分散相（1）、第2分散相（2）および連続相（3）は各スリット内をそれぞれ上方に送液される。

[0112] 液体分配用部品（42）上の3つのスリット（すなわち第1分散相供給用スリット（11R）、第2分散相供給用スリット（12R）および連続相供給用スリット（13R））、及び排出口（14-1）の一部である円筒形孔（14H）と、微細溝（16-3）を有する部品（42）とを接合したものを図10（a）に示す。図10（a）では、外側の円環状スリット（11R）に第1分散相が供給され、中間の円環状スリット（12R）に第2分散相が供給され、内側のスリット（13R）に連続相（3）が供給される。

[0113] 第1分散相（1）および第2分散相（2）は微細溝（16-3）から形成されたマイクロ流路（16-3）に供給され、第1分散相供給用スリット（11R）と第2分散相供給用スリット（12R）とを結ぶマイクロ流路（1

6-3)において第1分散相(1)および第2分散相(2)の二相並行連続流(4)を形成する。連続相(3)はマイクロ流路(16-3)に供給され、二相並行連続流(4)が流れるマイクロ流路(16-3)と連続相供給用スリット(13R)との接続箇所付近において生成した二相液滴がマイクロ流路(16-3)を経て中央の排出用円筒形孔(14H)から排出される。

[0114] 図11(a)は、実施態様7のマイクロ二相液滴生成デバイス(100)を、1本のマイクロ流路(16-3)の長手方向に沿って切断した縦断面の一部模式図であり、二相液滴が生成される様子を模式的に示している。図11(a)において、密封用の蓋(23)と液体分配用部品(42)の接合面の下方向に、微細溝に基づくマイクロ流路(16-3)が形成されており、マイクロ流路(16-3)、すなわち、微細溝の底面(下面)を基準面として、スリット(12R、13R)は基準面から垂直に下方向に延在している。

[0115] 複数のマイクロ流路(16-3)に対して、図11(a)の左から第1分散相(1)が供給されて第1分散相(1)の流れが形成され、第1スリット(12R)から第2分散相(2)が供給されて第2分散相(2)の流れが形成されると、マイクロ流路(16-3)と第1スリット(12R)の接続箇所において、第1分散相(1)の流れと第2分散相(2)の流れとが出会い、マイクロ流路(16-3)の第1スリット(12R)及び第2スリット(13R)の間のマイクロ流路(16-3)において、第1分散相(1)と第2分散相(2)の二相並行連続流(4)が形成される。

[0116] 複数のマイクロ流路(16-3)に対して、連続相供給用スリット(13R)から連続相(3)が供給されると、連続相供給用スリット(13R)との接続箇所付近のマイクロ流路(16-3)において連続相(3)の流れを駆動力として二相並行連続流(4)の流れがせん断されて、第1分散相(1)と第2分散相(2)の二相がコアシェル型又はヤヌス型構造などを有する二相液滴(5)を生成することができる。図11(a)では、説明のために、コアシェル型液滴(5-2)及びヤヌス型液滴(5-1)の2種類の二相

液滴を描いているが、実際にはコアシェル型液滴（５－２）又はヤヌス型液滴（５－１など）の一つの二相液滴（５）が生成する。また、図１１（ａ）において、コアシェル型液滴（５－２）は第２分散相（２）をコア、第１分散相（１）をシェルとするコアシェル型液滴（５－２）を示しているが、第１分散相（１）をコア、第２分散相（２）をシェルとするコアシェル型液滴であり得る。

[0117] 二相液滴（５）を含む生成物は、生成物排出用円筒形穴（１４Ｈ）及び生成物排出口（１４－１）を通過して排出される。

[0118] （実施態様８）

実施態様８のマイクロ二相液滴生成デバイス（１００）は、実施態様７のマイクロ二相液滴生成デバイス（１００）と類似するが、実施態様７における連続相供給用スリットと生成物排出用円筒形穴とは相互に入れ替えられ、連続相供給口と生成物排出口とは相互に入れ替えられる点で異なる。その結果、図１０（ａ）（ｂ）において、スリット（１３Ｒ）が生成物排出用スリットであり、円筒形穴（１４Ｈ）が連続相供給用円筒形穴であり、液体輸送口（１３－１）が生成物排出口であり、液体輸送口（１４－１）が連続相供給口である。

[0119] 実施態様８では、マイクロ流路（１６－３）に対して、それぞれ、第１分散相供給用スリット（１１Ｒ）から第１分散相（１）が供給され、第２分散相供給用スリット（１２Ｒ）から第２分散相（２）が供給され、連続相供給口（１４－１）及び連続相供給用円筒形穴（１４Ｈ）から連続相（３）が供給され、次に説明するように、第１スリット（１２Ｒ）及び第２スリット（１３Ｒ）の間のマイクロ流路（１６－３）において二相並行連続流（４）が形成され、マイクロ流路（１６－３）の第２スリット（１３Ｒ）との接合箇所付近においてコアシェル型又はヤヌス型などの二相液滴（５－１，５－２）が生成し、その二相液滴（５－１，５－２）が生成物排出用スリット（１３Ｒ）及び生成物排出口（１３－１）を通過して排出される。

[0120] 図１１（ｂ）は、実施態様８のマイクロ二相液滴生成デバイス（１００）

を、1本のマイクロ流路(16-3)の長手方向に沿って切断した縦断面の一部模式図であり、二相液滴が生成される様子を模式的に示している。図11(b)において、密封用の蓋(23)と液体分配用部品(42)の接合面の下方向に、微細溝に基づくマイクロ流路(16-3)が形成されており、マイクロ流路(16-3)、すなわち、微細溝の底面(下面)をつなぐ仮想平面を基準面として、スリット(12R、13R)は基準面から垂直に下方向に延在している。

[0121] 複数のマイクロ流路(16-3)に対して、図11(b)の左から第1分散相(1)が供給されて第1分散相(1)の流れが形成され、第1スリット(12R)から第2分散相(2)が供給されて第2分散相(2)の流れが形成されると、マイクロ流路(16-3)と第1スリット(12R)の接続箇所において、第1分散相(1)の流れと第2分散相(2)の流れとが出会い、マイクロ流路(16-3)の第1スリット(12R)及び第2スリット(13R)の間のマイクロ流路(16-3)において、第1分散相(1)と第2分散相(2)の二相並行連続流(4)が形成される。

[0122] 複数のマイクロ流路(16-3)に対して、連続相供給用円筒形穴(14H)から連続相(3)がマイクロ流路(16-3)に供給されると、生成物排出用スリット(13R)のマイクロ流路(16-3)との接続箇所付近において連続相(3)の流れを駆動力として二相並行連続流(4)の流れがせん断されて、第1分散相(1)と第2分散相(2)の二相がコアシェル型又はヤヌス型構造などを有する二相液滴(5)を生成することができる。図11(b)では、説明のために、コアシェル型液滴(5-2)及びヤヌス型液滴(5-1)の2種類の二相液滴を描いているが、実際にはコアシェル型液滴(5-2)又はヤヌス型液滴(5-1)などの一つの二相液滴(5)が生成する。また、図11(b)において、コアシェル型液滴(5-2)は第2分散相(2)をコア、第1分散相(1)をシェルとするコアシェル型液滴(5-2)を示しているが、第1分散相(1)をコア、第2分散相(2)をシェルとするコアシェル型液滴であり得る。

[0123] 二相液滴（５）を含む生成物は、生成物排出用スリット（１３Ｒ）及び生成物排出口（１３－１）を通過して排出される。

[0124] （実施態様９）

実施態様９において、実施態様５～６において用いられた装置の中央円筒形孔（１４Ｈ）を円環状スリット（１４Ｒ）にするように、図１２に示すように５つの部材を用いて液体分配部品（４３）を構成し、微細溝を有する部品（微細溝アレイ基板）（２４）と貼り合わせることにより、同様に液滴の生成に用いることができる。

[0125] 微細溝アレイ基板（２４）は微細溝（１６－４）を有する部品であり、円環状スリットは４つ（１１Ｒ，１２Ｒ，１３Ｒ，１４Ｒ）あり、それぞれ供給口または排出口（１１－１，１２－１，１３－１，１４－１）と接続されており、液体分配部品（４３）は、第１部材（４３－１），第２部材（４３－２），第３部材（４３－３），第４部材（４３－４），第５部材（４３－５）によって構成されている。

[0126] （実施態様１０）

実施態様１０において、実施態様７～８において用いられた装置の中央円筒形孔（１４Ｈ）を円環状スリット（１４Ｒ）にするように、図１３に示すように５つの部材を用いて液体分配部品（４４）を構成し、密封用の蓋（２５）と貼り合わせることにより、同様に液滴の生成に用いることができる。

[0127] ここでも、円環状スリットは４つ（１１Ｒ，１２Ｒ，１３Ｒ，１４Ｒ）あり、それぞれ供給口または排出口（１１－１，１２－１，１３－１，１４－１）と接続されており、液体分配用部品（４４）は、第１部材（４４－１），第２部材（４４－２），第３部材（４４－３），第４部材（４４－４），第５部材（４４－５）によって構成されている。

[0128] また、本発明では、本発明のマイクロ二相液滴生成デバイスを用いて、マイクロ二相液滴を生成することができる。すなわち、本発明によれば、マイクロ二相液滴生成方法も提供される。

実施例

[0129] 以下、実施例により、本発明をさらに詳細に説明する。

[0130] (実施例1)

矩形断面形状を有する並列化直線マイクロ流路基板（微細溝アレイ基板）と液体分配用部品から構成される液滴生成デバイス（図2）を設計・製作して用いた。マイクロ流路基板は、16本の矩形断面（幅100 μ m、高さ100 μ m）及び長さ13mmの形状を有する直線マイクロ流路からなり、流路同士の間隔は100 μ mとした。一方、液体分配用部品は、幅30mm、長さ33mm、高さ8mmの2つの部材の積層によって構成した（図2）。上部の部材は、第1分散相供給用スリット、第2分散相供給用スリット（第1スリット）、連続相供給用スリット（第2スリット）、生成物排出（液体回収）用スリットの計4つのスリットを有し、下部の部材は、第1分散相供給口、第2分散相供給口、連続相供給口、および生成物排出口を有し、それぞれ上部部材のスリットと接続される。各スリットの幅は500 μ m、長さは5mmであり、各スリット同士のピッチは3mmとした（図2（b））。

[0131] マイクロ流路基板は、Si基板上にネガ型フォトリソグレイドであるSU-8（日本化薬）を用いて作製した高さ100 μ mの鋳型からポリジメチルシロキサン（PDMS）にパターンを転写することで作製した。PDMS原料として、Silpot184（東レ・ダウコーニング）を用いた。液体分配用部品の2つの部材は、ステンレス素材（SUS304）を機械加工することで作製した。また、液体分配用部品（30）のスリット状の貫通孔はワイヤ放電加工により作製した。マイクロ流路基板と液体分配用部品を酸素プラズマ処理により接合した後、高分子電解質であるpoly(allylamine hydrochloride)(PAH)、poly(sodium4-styrenesulfonate)(PSS)の水溶液を交互に流路内に導入することで、流路壁面の親水化処理を行った。

[0132] 導入試料として、連続相には、ポリビニルアルコール（GL-03、三菱化学）の2wt%水溶液、第1分散相としてシリコンオイル（SO、SH200-10CS、東レ・ダウコーニング）、第2分散相として1,6-ヘキサジオールジアクリレート（HDDA、新中村化学工業）を用いた。液体分配用部品への送液

には10 mLガラスシリンジ (1000 series, Hamilton Company, USA) 及びシリンジポンプ (KDS200, KD Scientific, USA) を用いた。マイクロ流路内での液滴生成の様子を観察するために正立顕微鏡 (BX-51, オリンパス) と高速ビデオカメラ (FASTCAM Mini AX50, フォトロン) を組み合わせて用いた。

[0133] 連続相流量 (Q_c) を30 mL/h, 第1分散相であるSOの流量 (Q_s) を6 mL/h, 第2分散相であるHDDAの流量 (Q_m) を6 mL/h, に設定した際の, 並列化マイクロ流路内での二相液滴生成の様子を図14に示す。マイクロ流路と連続相供給用スリットの接続箇所近傍において二相液滴が生成されることが観察された。生成された液滴を装置外部で回収して観察した結果を図15に示す。生成された液滴はSOをコア, HDDAをシェルとするコアシェル構造を有しており, 内包滴の平均径は87 μm , 変動係数 (CV値) は3.1%, 外部滴の平均径は108 μm , CV値は5.6%であった。

[0134] (実施例2)

実施例1と同一の実験装置を用い, 第1分散相をHDDA, 第2分散相を界面活性剤 (BY11-030, 東レ・ダウコーニング) を0.1 wt%となるよう添加したSO (SH200-10CS, 東レ・ダウコーニング) とする以外は実施例1と同条件で実験を行った。並列化マイクロ流路内での二相液滴生成の様子を図16-1に示す。生成された液滴を装置外部で回収して観察した結果を図16-2に示す。生成された液滴はSOとHDDAが相分離とともに連続相に部分的に露出したヤヌス構造を有していた。

[0135] (実施例3)

実施例1, 2と同一の実験装置を用い, 第1分散相であるHDDAの流量 (Q_m) を8 mL/h, 第2分散相である界面活性剤を添加したSOの流量 (Q_s) を4 mL/hとする以外は実施例2と同条件で実験を行った。生成された液滴を装置外部で回収して観察した結果を図17に示す。生成された液滴はSOとHDDAが相分離とともに連続相に部分的に露出したヤヌス構

造を有していた。図17に示されているようにSOおよびHDDAの部位の径を測定したところ、HDDAの部位の平均径は109 μ m、CV値は2.6%、SOの部位の平均径は91 μ m、CV値は2.8%であった。

産業上の利用可能性

[0136] 本発明によれば、マイクロ二相液滴生成デバイスにおいて、液体分配用流路と、複数の二相並行連続流形成用流路および二相液滴生成用流路を接続するために、各二相並行連続流形成用流路および二相液滴生成用流路に対応する個別の貫通孔を必要としないマイクロ二相液滴生成デバイスを提供し得る。

符号の説明

- [0137]
- 1 第1分散相
 - 2 第2分散相
 - 3 連続相
 - 4 二相並行連続流
 - 5 二相液滴
 - 5-1 ヤヌス型液滴
 - 5-2 コアシェル型液滴
 - 6 生成物
 - 11 第1液体輸送口（スリット）
 - 11R 第1液体輸送口（円環状スリット）
 - 11-1 第1分散相供給口
 - 12 第1スリット
 - 12R 第1スリット（円環状スリット）
 - 12-1 第2分散相供給口
 - 13 第2液体輸送口（スリット）
 - 13R 第2液体輸送口（円環状スリット）
 - 13-1 連続相供給口又は排出口
 - 14 第3液体輸送口（スリット）

- 1 4 R 第2開口（スリット）（円環状スリット）
- 1 4 H 第2開口（円筒形穴）
- 1 4 - 1 排出口又は連続相供給口
- 1 6 マイクロ流路（の列）
 - 1 6 - 1 微細溝又はマイクロ流路（の列）
 - 1 6 - 2 微細溝又はマイクロ流路（の列）
 - 1 6 - 3 微細溝又はマイクロ流路（の列）
 - 1 6 - 4 微細溝又はマイクロ流路（の列）
 - 1 6 - 5 微細溝又はマイクロ流路（の列）
- 2 0 微細溝アレイ基板（マイクロ流路アレイ）
- 2 1 密封用の蓋
- 2 2 微細溝アレイ基板（マイクロ流路アレイ）
- 2 3 密封用の蓋
- 2 4 微細溝アレイ基板（マイクロ流路アレイ）
- 2 5 密封用の蓋
- 3 0 液体分配用部品
- 3 1 第1部材
- 3 2 第2部材
- 3 3 液体分配用部品
- 3 4 第1部材
- 3 5 第2部材
- 4 1 液体分配用部品
 - 4 1 - 1 液体分配用部品を構成する部材（第1部材）
 - 4 1 - 2 液体分配用部品を構成する部材（第2部材）
 - 4 1 - 3 液体分配用部品を構成する部材（第3部材）
 - 4 1 - 4 液体分配用部品を構成する部材（第4部材）
- 4 2 液体分配用部品
 - 4 2 - 1 液体分配用部品を構成する部材（第1部材）

- 4 2 - 2 液体分配用部品を構成する部材 (第 2 部材)
- 4 2 - 3 液体分配用部品を構成する部材 (第 3 部材)
- 4 2 - 4 液体分配用部品を構成する部材 (第 4 部材)
- 4 3 液体分配用部品
 - 4 3 - 1 液体分配用部品を構成する部材 (第 1 部材)
 - 4 3 - 2 液体分配用部品を構成する部材 (第 2 部材)
 - 4 3 - 3 液体分配用部品を構成する部材 (第 3 部材)
 - 4 3 - 4 液体分配用部品を構成する部材 (第 4 部材)
 - 4 3 - 5 液体分配用部品を構成する部材 (第 5 部材)
- 4 4 液体分配用部品
 - 4 4 - 1 液体分配用部品を構成する部材 (第 1 部材)
 - 4 4 - 2 液体分配用部品を構成する部材 (第 2 部材)
 - 4 4 - 3 液体分配用部品を構成する部材 (第 3 部材)
 - 4 4 - 4 液体分配用部品を構成する部材 (第 4 部材)
 - 4 4 - 5 液体分配用部品を構成する部材 (第 5 部材)

請求の範囲

[請求項1]

複数のマイクロ流路（16）の列と、

該マイクロ流路（16）の長手方向に次の順序で配置された、第1液体輸送口（11）、第1スリット（12）、第2液体輸送口（13）及び第3液体輸送口（14）と、

を備えるマイクロ二相液滴生成デバイス（100）であって、

ここで、「スリット」とは、該複数のマイクロ流路（16）の列が存在する基準面において幅と該幅の寸法より大きい寸法の軸線を有する線状の端面を有し、該複数のマイクロ流路（16）の列は、該基準面の上に存在し、該複数のマイクロ流路（16）の列は、該基準面を終端とする該スリット（12）と該基準面で接続されており、該スリット（12）は、該基準面を終端として該基準面から該基準面の下に横断方向に延在するものと定義され、

該第1スリット（12）は、該第2分散相供給口（12-1）の一部を構成するものであり、該第2液体輸送口（13）は、連続相供給口又は排出口の一部を構成するものであり、かつ該第1スリット（12）及び該第2液体輸送口（13）は、該複数のマイクロ流路（16）との接続箇所を終端とするものであり、

該複数のマイクロ流路（16）は、該第1スリット（12）及び該第2液体輸送口（13）の終端の存在する面において、該第1液体輸送口（11）の終端と該第1スリット（12）の終端とを接続し、該第1スリット（12）の終端と該第2液体輸送口（13）の終端を接続し、第2液体輸送口（13）の終端と第3液体輸送口（14）の終端を接続するように配置され、ここで、該第2液体輸送口（13）は連続相供給口の終端であるか又は排出口の終端であり、該第2液体輸送口（13）が連続相供給口の終端であるときは、該第3液体輸送口（14）は排出口であり、該第2液体輸送口（13）が排出口の終端であるときは、該第3液体輸送口（14）は連続相供給口であり、

第1分散相(1)が該第1液体輸送口(11)から該複数のマイクロ流路(16)に供給され、第2分散相(2)が該第1スリット(12)から該複数のマイクロ流路(16)に供給され、ここで、第1分散相(1)と第2分散相(2)とは、互いに完全には混じり合わない液体であり、

該第1スリット(12)の終端と該第2液体輸送口(13)の終端とを結ぶ該マイクロ流路(16)において、該第1分散相(1)と該第2分散相(2)は、該第1分散相(1)と該第2分散相(2)の二相を並行に含む連続流である二相並行連続流(4)を形成し、

連続相(3)が該第2液体輸送口(13)又は該第3液体輸送口(14)の一方から該複数のマイクロ流路(16)に供給され、

該第2液体輸送口(13)と該複数のマイクロ流路(16)との接続箇所において、該第1分散相(1)と該第2分散相(2)による二相液滴(5)が生成され、

該二相液滴(5)を含む生成物(6)は該第2液体輸送口(13)又は該第3液体輸送口(14)の他方から回収される、

ように構成してなるマイクロ二相液滴生成デバイス。

[請求項2] 該第2液体輸送口(13)が第2スリットであり、該第2スリット(13)も前記のスリットの定義を満たし、該第2液体輸送口(13)と該複数のマイクロ流路(16)との該接続箇所において、該連続相(3)の流れを駆動力として該二相並行連続流(4)をせん断して、該二相液滴(5)を生成する、請求項1に記載のマイクロ二相液滴生成デバイス。

[請求項3] 該二相液滴(5)がコアシェル型二相液滴である、請求項1又は2に記載のマイクロ二相液滴生成デバイス。

[請求項4] 該二相液滴(5)がヤヌス型二相液滴である、請求項1又は2に記載のマイクロ二相液滴生成デバイス。

[請求項5] 該第1液体輸送口(11)の終端、該第2液体輸送口(13)の終

端及び／又は該第3液体輸送口（14）の終端がスリット状である，請求項1～4のいずれか一項に記載されたマイクロ二相液滴生成デバイス。

[請求項6] 該第1スリット（12）を含むスリット（11，12，13，14）が，平板状のスリットである，請求項1～5のいずれか一項に記載されたマイクロ二相液滴生成デバイス。

[請求項7] 該第1スリット（12）を含むスリット（11，12，13，14）が，環状のスリットである，請求項1～5のいずれか一項に記載されたマイクロ二相液滴生成デバイス。

[請求項8] 該スリット（12）を備えた部品（30，41，43）と，表面に複数の微細溝（16，16-2，16-4）の列が加工された平板部品（20，22，24）とを，互いに位置あわせして，該複数のスリット（12，13）の終端の面と、該平板部品（20，22，24）の該微細溝（16，16-2，16-4）が加工された側の面とを貼り合わせることで構成される，請求項6または7に記載されたマイクロ二相液滴生成デバイス。

[請求項9] 該スリット（12）を備えた部品（33，42，44）の表面に該複数の微細溝（16）の列が加工されており，別の平板部品（21，23，25）によって該微細溝（16-1，16-3，16-5）を密封することで該複数のマイクロ流路の列が形成される，請求項6または7に記載されたマイクロ二相液滴生成デバイス。

[請求項10] 該マイクロ流路（16）の内壁を親水性表面で構成し，該第1分散相（1）が有機相であり，該第2分散相（2）が有機相であり、該連続相が水相であり、コアシェル型又はヤヌス型マイクロ液滴を生成する，請求項1～9のいずれか一項に記載のマイクロ二相液滴生成デバイス。

[請求項11] 該第2液体輸送口（13）の内壁を親水性表面で構成し、該第1分散相（1）が有機相であり，該第2分散相（2）が有機相であり、該

連続相が水相であり、コアシェル型又はヤヌス型マイクロ液滴を生成する、請求項1～9のいずれか一項に記載のマイクロ二相液滴生成デバイス。

[請求項12] 該第1スリット(12)の終端と該第2液体輸送口(13)の終端とを結ぶ該マイクロ流路(16)の内壁が疎水性表面で構成され、該第2液体輸送口(13)の終端と該第3液体輸送口(14)の終端とを結ぶ該マイクロ流路(16)の内壁が親水性表面で構成され、該第1分散相(1)と該第2分散相(2)のいずれか一方が水相、他方が有機相であり、該連続相(3)が水相であり、該連続相(3)が該第2液体輸送口(13)から該マイクロ流路(16)に供給され、水相をコア、有機相をシェルとするコアシェル型マイクロ液滴を生成する、請求項1～9のいずれか一項に記載のマイクロ二相液滴生成デバイス。

[請求項13] 該第1スリット(12)の終端と該第2液体輸送口(13)の終端とを結ぶ該マイクロ流路(16)の内壁が疎水性表面で構成され、該第2液体輸送口(13)の内壁が親水性表面で構成され、該第1分散相(1)と該第2分散相(2)のいずれか一方が水相、他方が有機相であり、該連続相(3)が水相であり、該連続相(3)が該第3液体輸送口(14)から該マイクロ流路(16)に供給され、水相をコア、有機相をシェルとするコアシェル型マイクロ液滴を生成する、請求項1～9のいずれか一項に記載のマイクロ二相液滴生成デバイス。

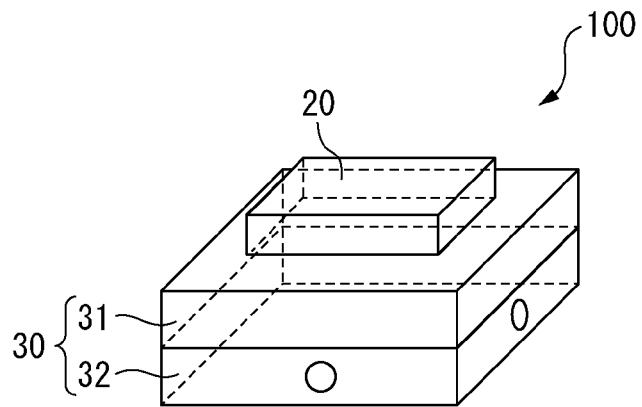
[請求項14] 該第1分散相を相1、該連続相を相2、該第2分散相を相3とし、該相1と該相2の間の界面張力を γ_{12} 、該相1と該相3の間の界面張力を γ_{13} 、該相2と該相3の間の界面張力を γ_{23} のように表示すると、 $\gamma_{12} > \gamma_{23}$ であり、かつ $S_i = \gamma_{jk} - (\gamma_{ij} + \gamma_{ki})$ 〔式中、 $i \neq j \neq k$ は1, 2, 3〕で定義されるspreading parameter S_i が、 $S_1 < 0$ 、 $S_2 < 0$ 、 $S_3 > 0$ であり、コアシェル型マイクロ液滴が生成される、請求項1～3, 5～13のいずれか一項に記載のマイ

クロ二相液滴生成デバイス。

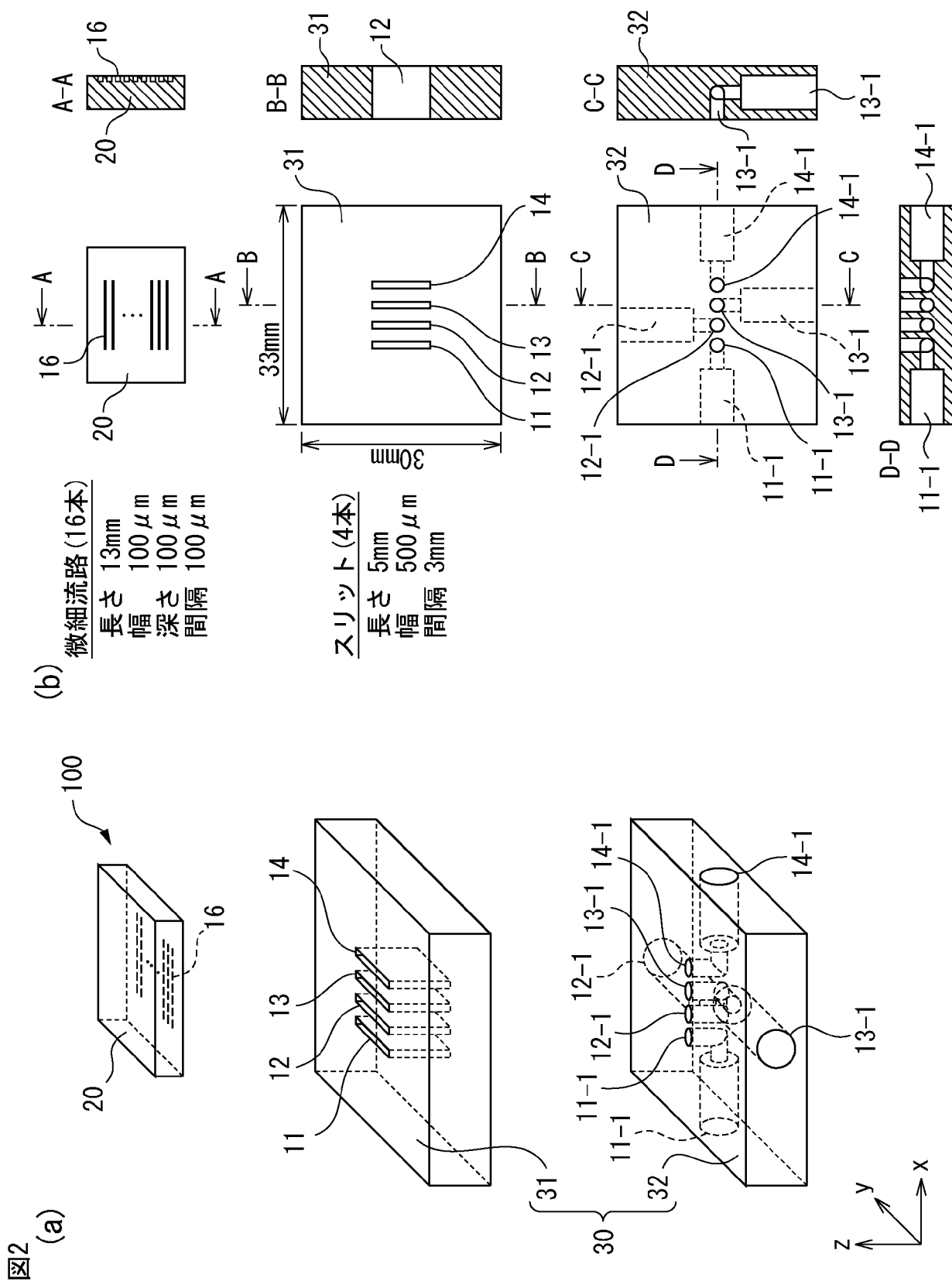
[請求項15] 該第1分散相を相1、該連続相を相2、該第2分散相を相3とし、該相1と該相2の間の界面張力を γ_{12} 、該相1と該相3の間の界面張力を γ_{13} 、該相2と該相3の間の界面張力を γ_{23} のように表示すると、 $\gamma_{12} > \gamma_{23}$ であり、 $S_i = \gamma_{jk} - (\gamma_{ij} + \gamma_{ki})$ 〔式中、 $i \neq j \neq k$ は1, 2, 3〕で定義されるspreading parameter S_i が、 $S_1 < 0$ 、 $S_2 < 0$ 、 $S_3 < 0$ であり、ヤヌス型マイクロ液滴が生成される、請求項1, 2, 4~11のいずれか一項に記載のマイクロ二相液滴生成デバイス。

[図1]

図1

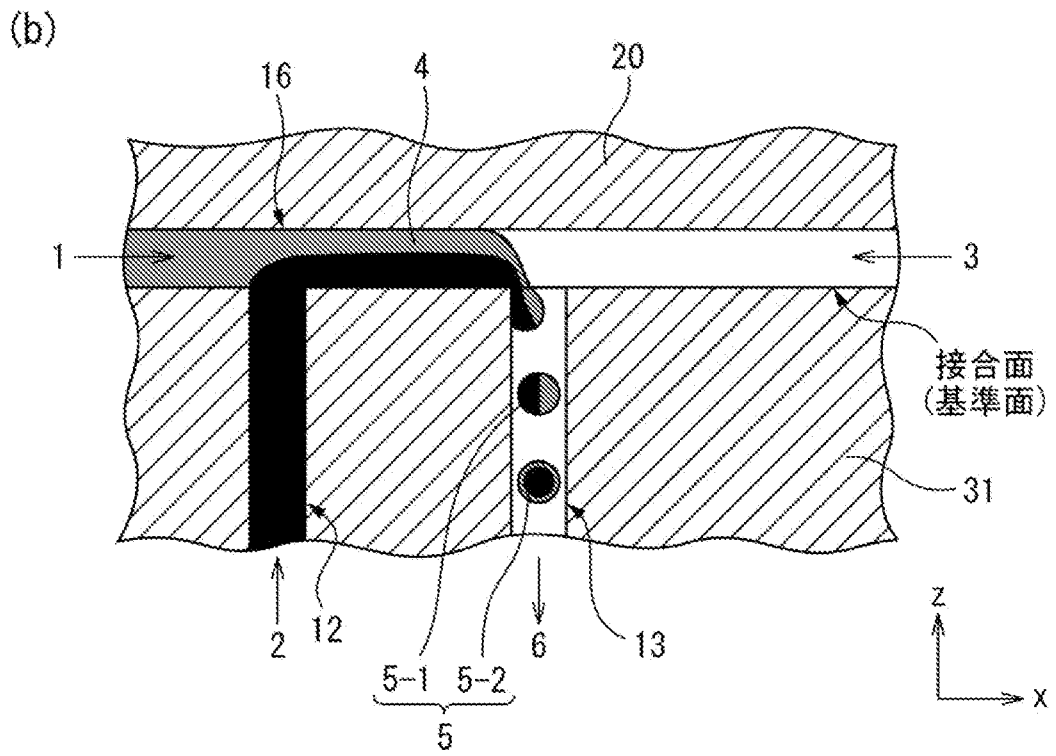
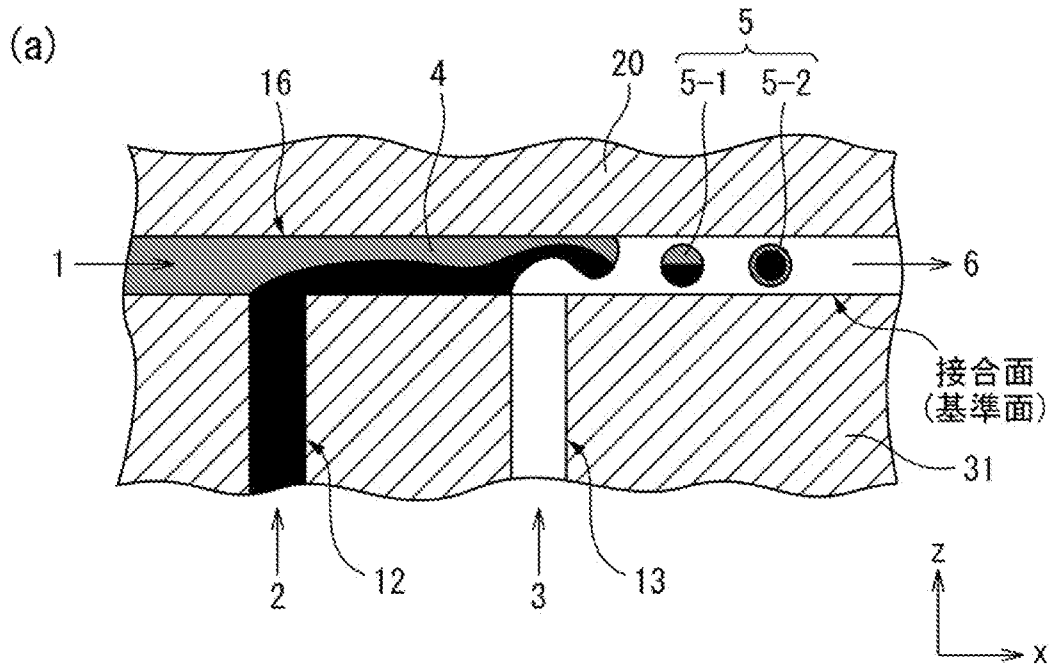


[図2]



[図3]

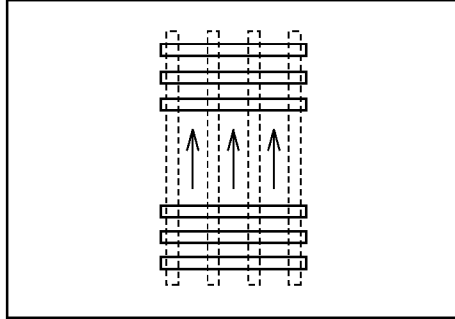
図3



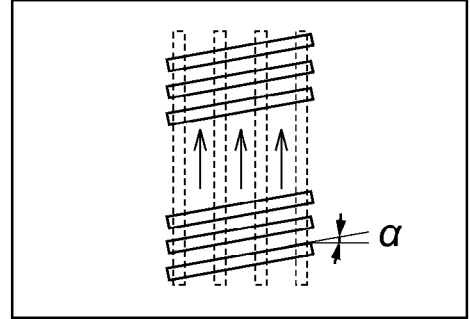
[図4]

図4

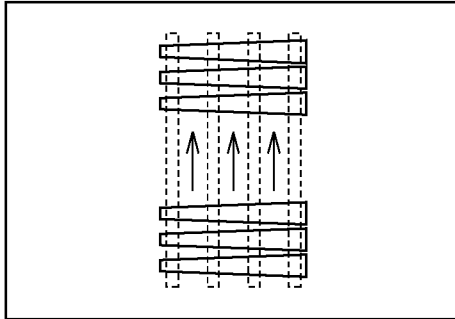
(a) ---スリット — 微細溝



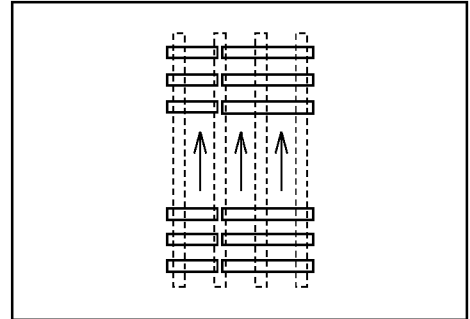
(b)



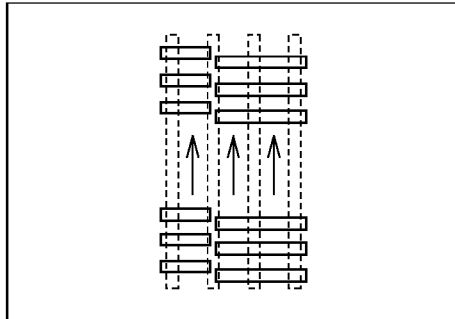
(c)



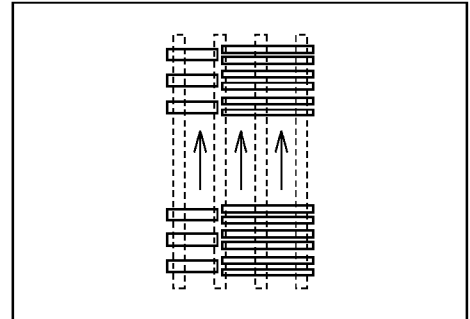
(d)



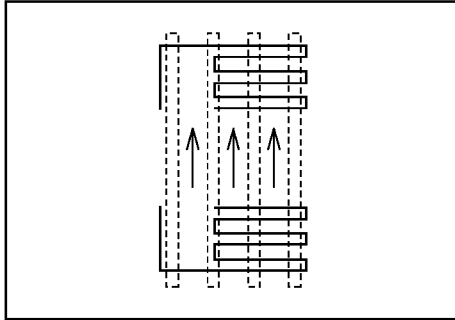
(e)



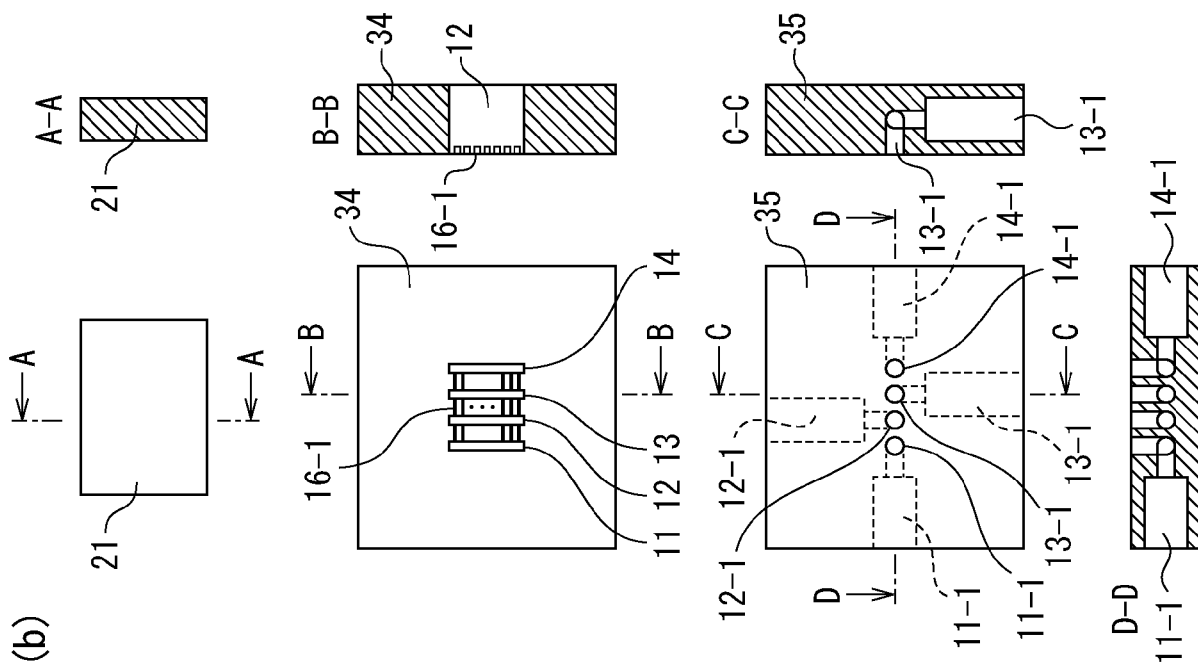
(f)



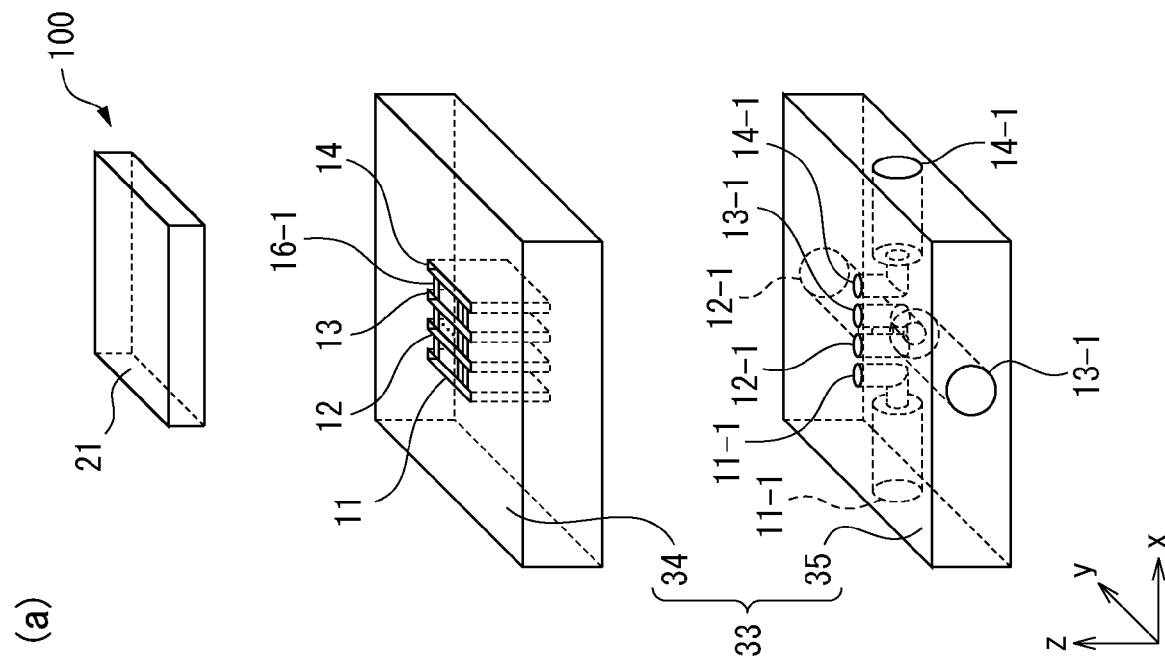
(g)



[図5]



(b)

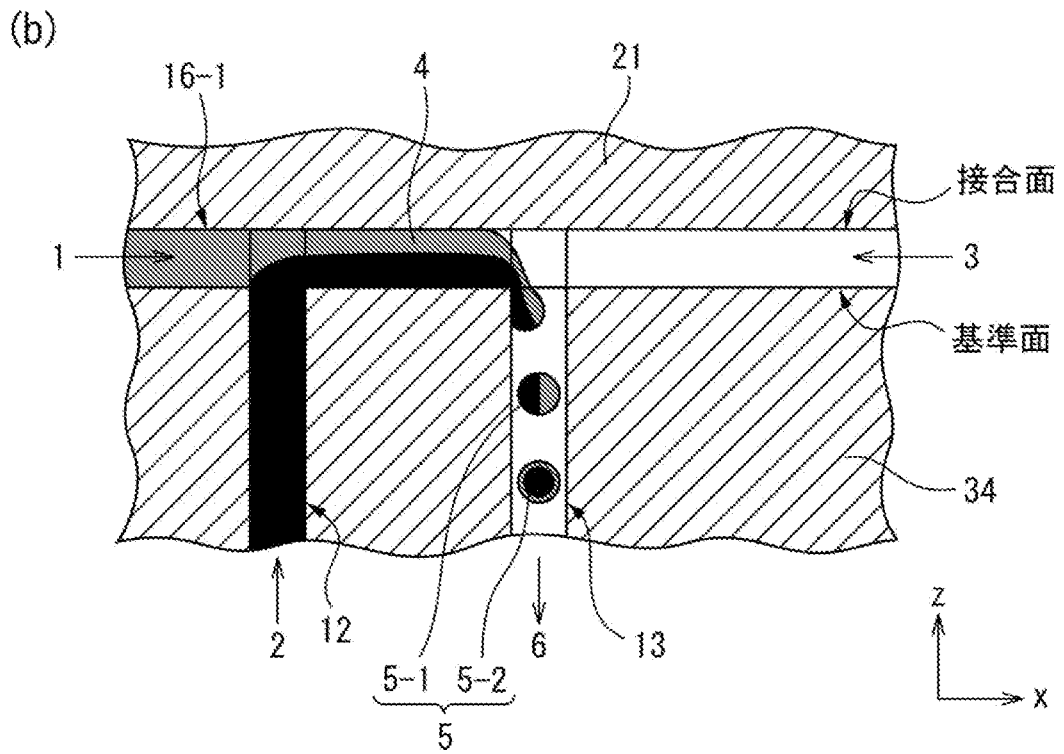
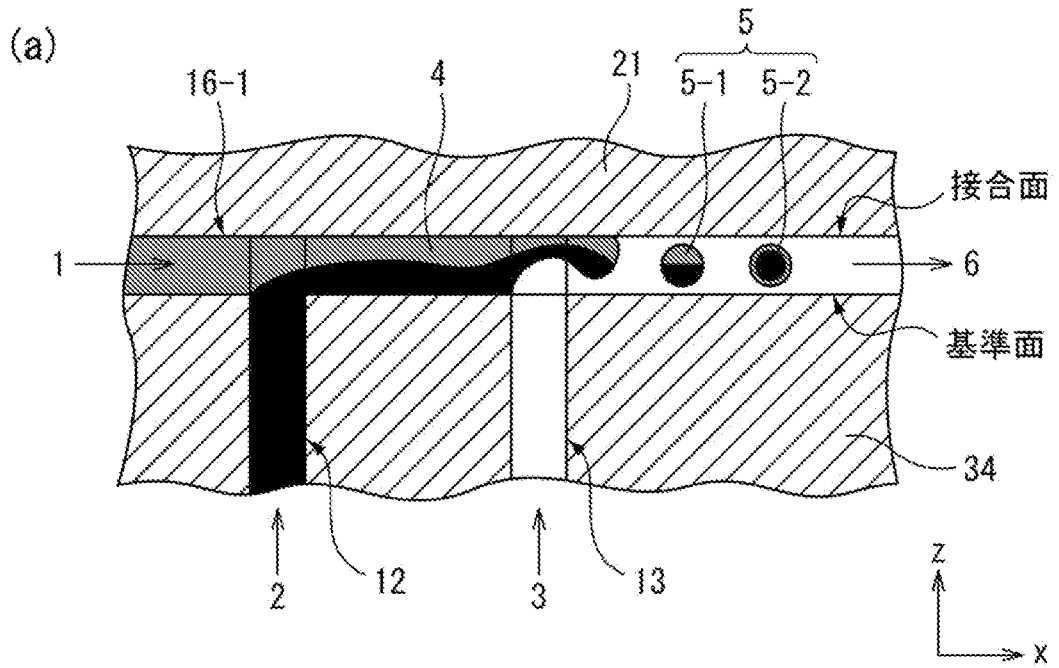


(a)

図5

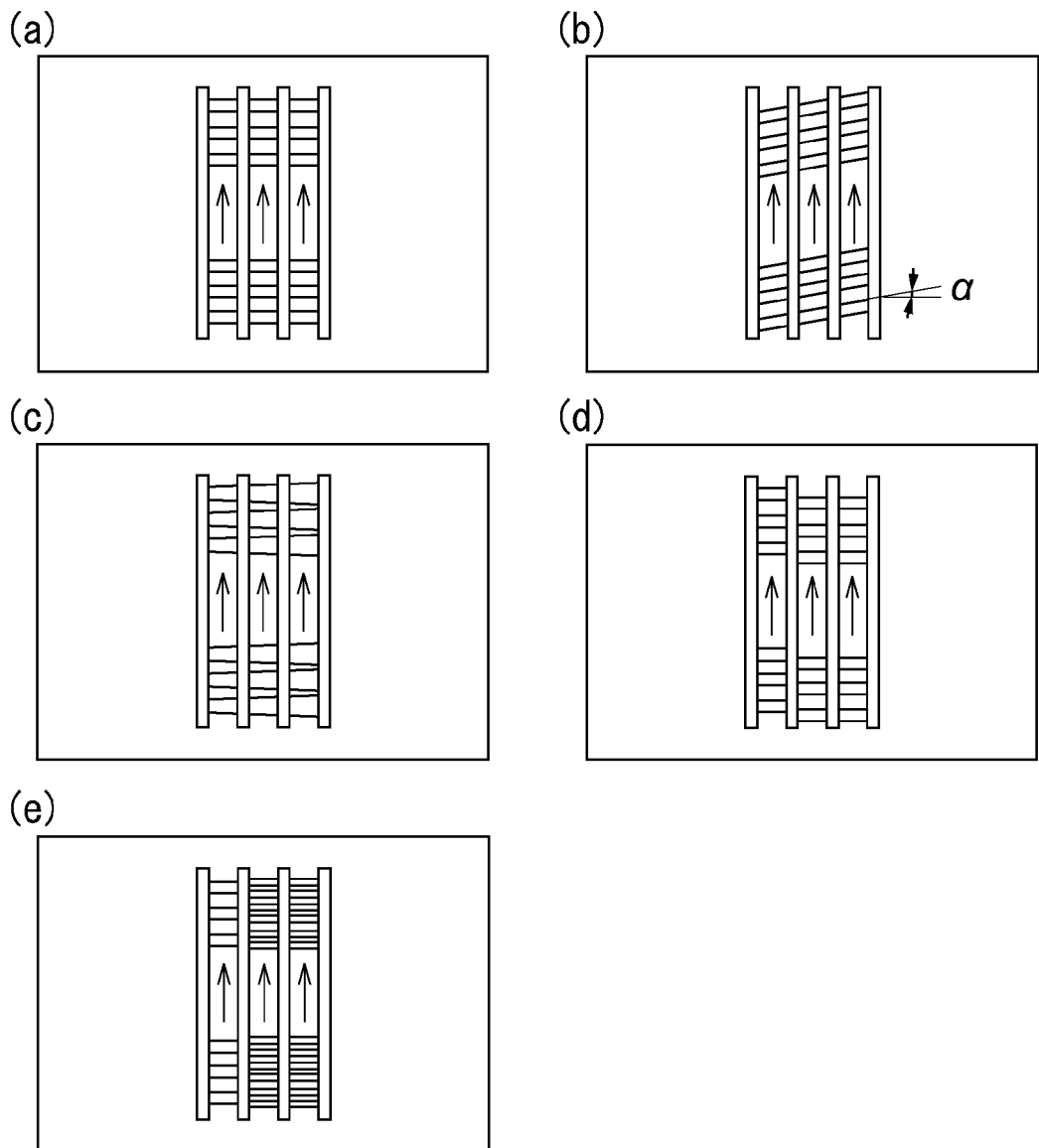
[図6]

図6

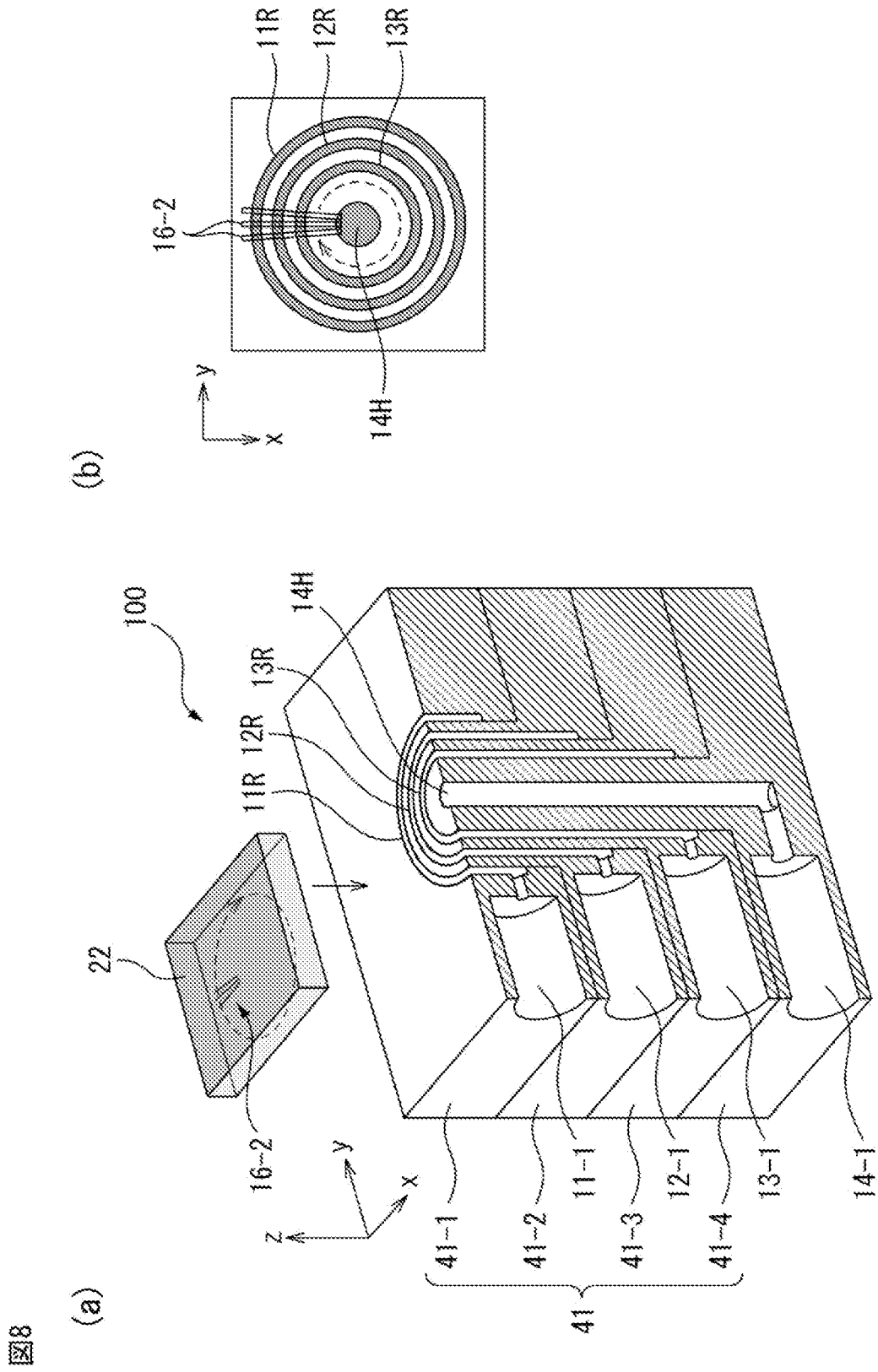


[図7]

図7

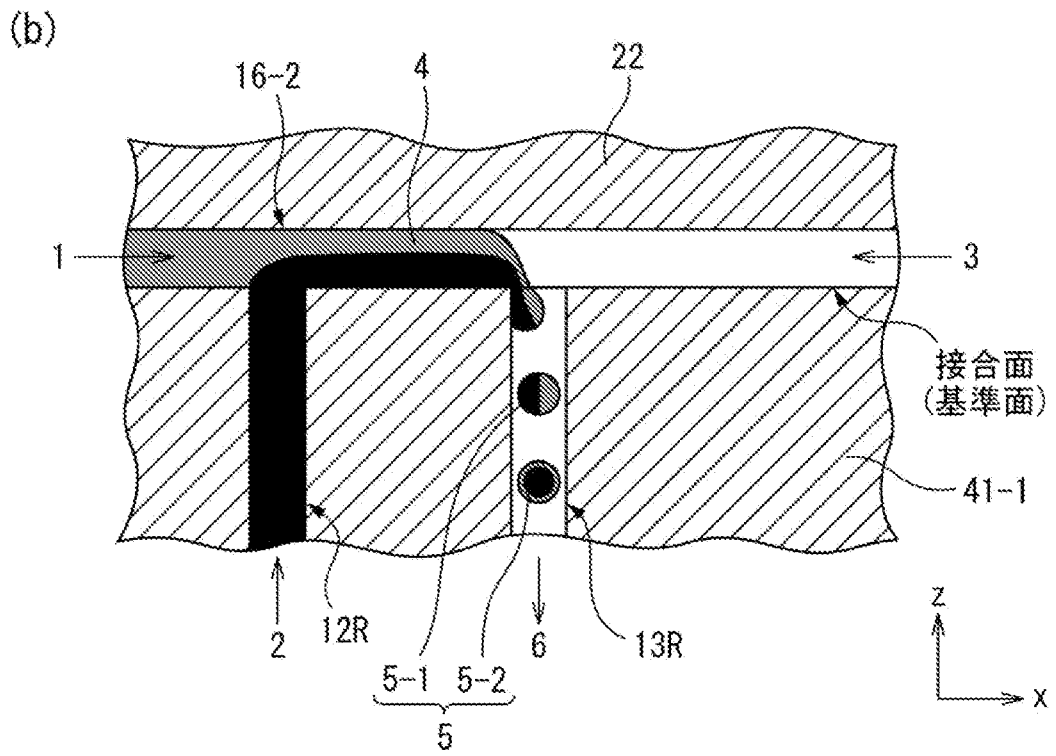
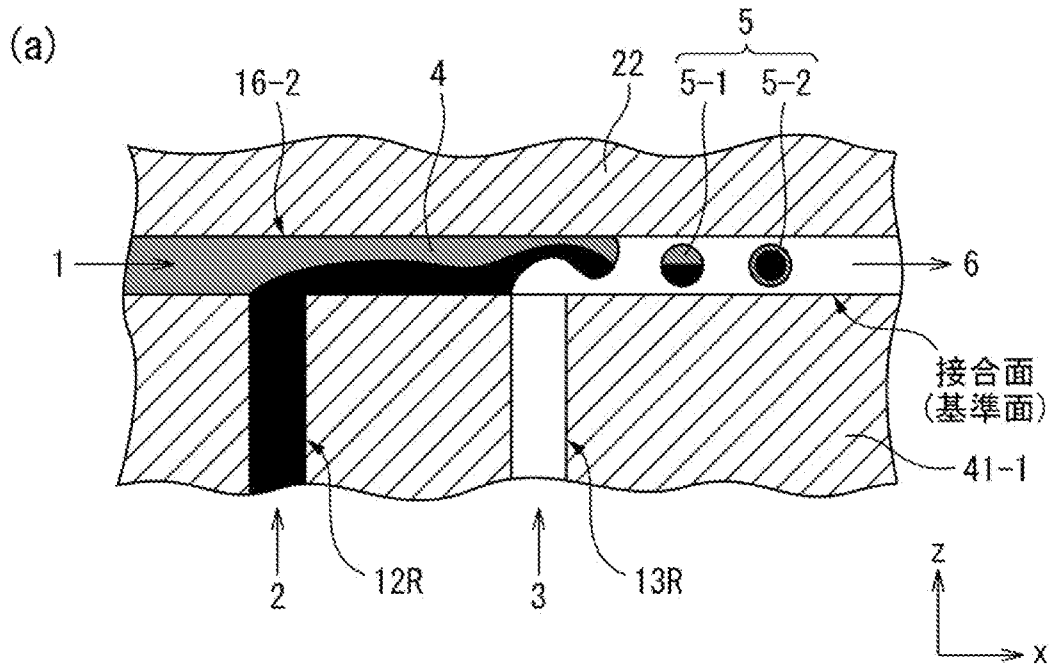


[圖8]

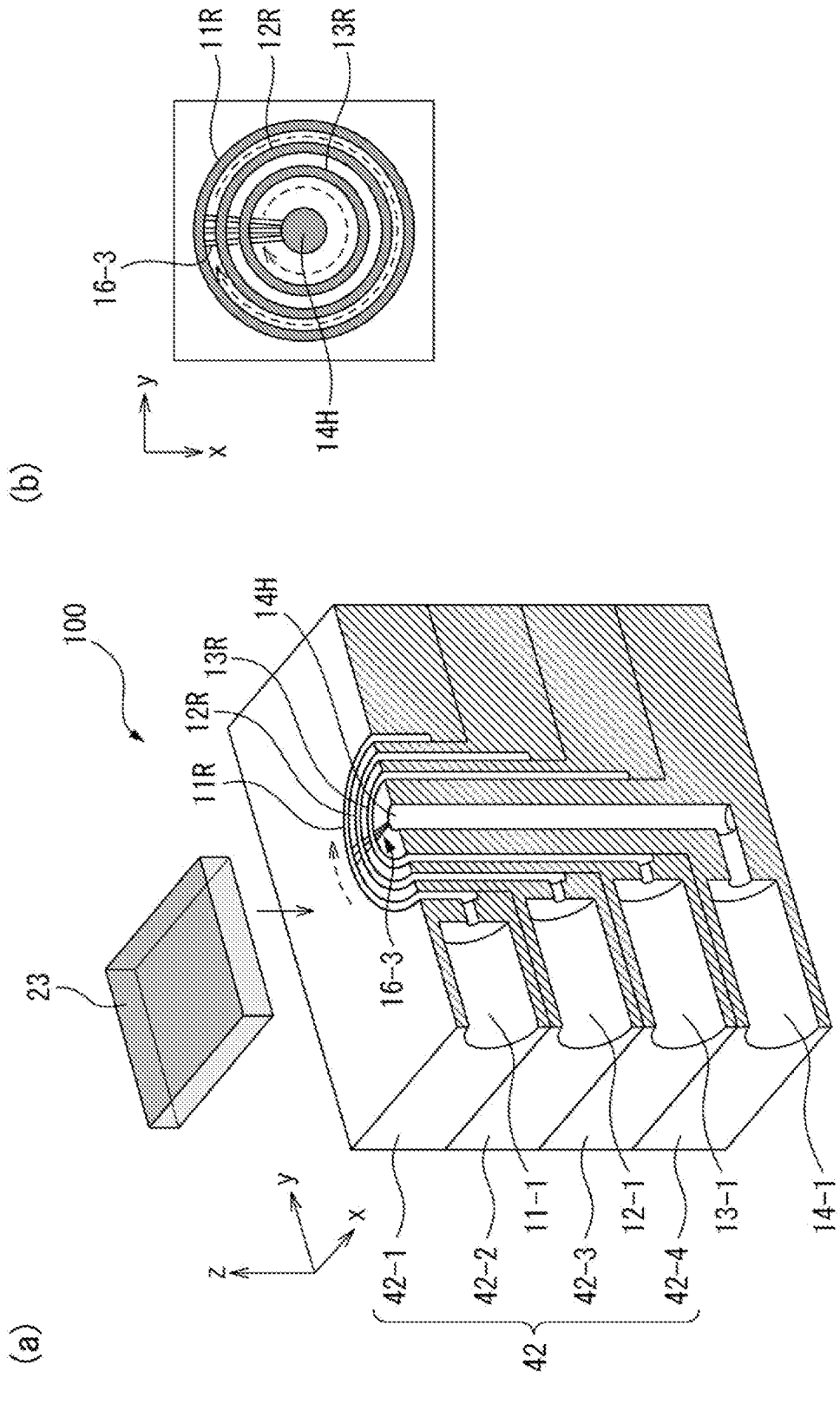


[図9]

図9

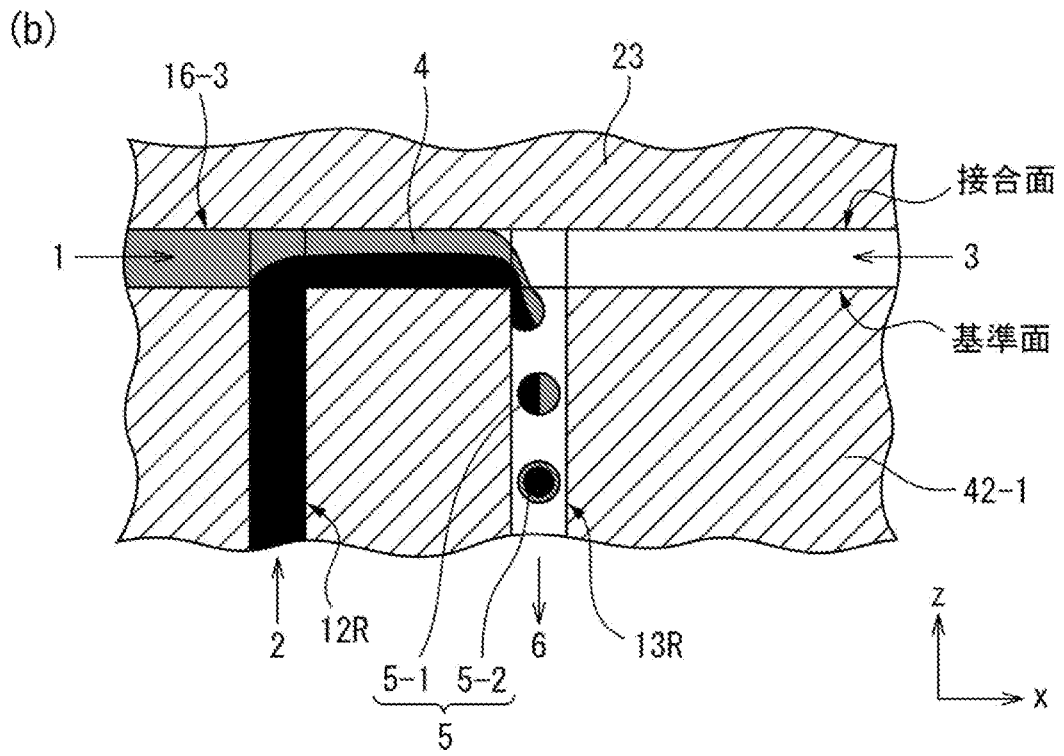
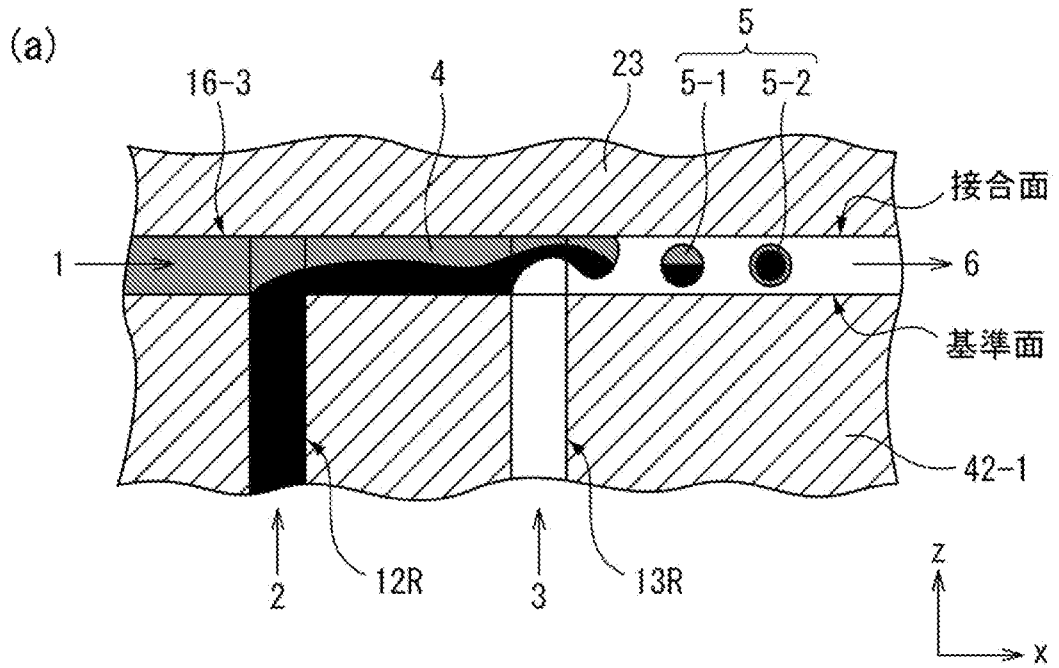


[圖10]



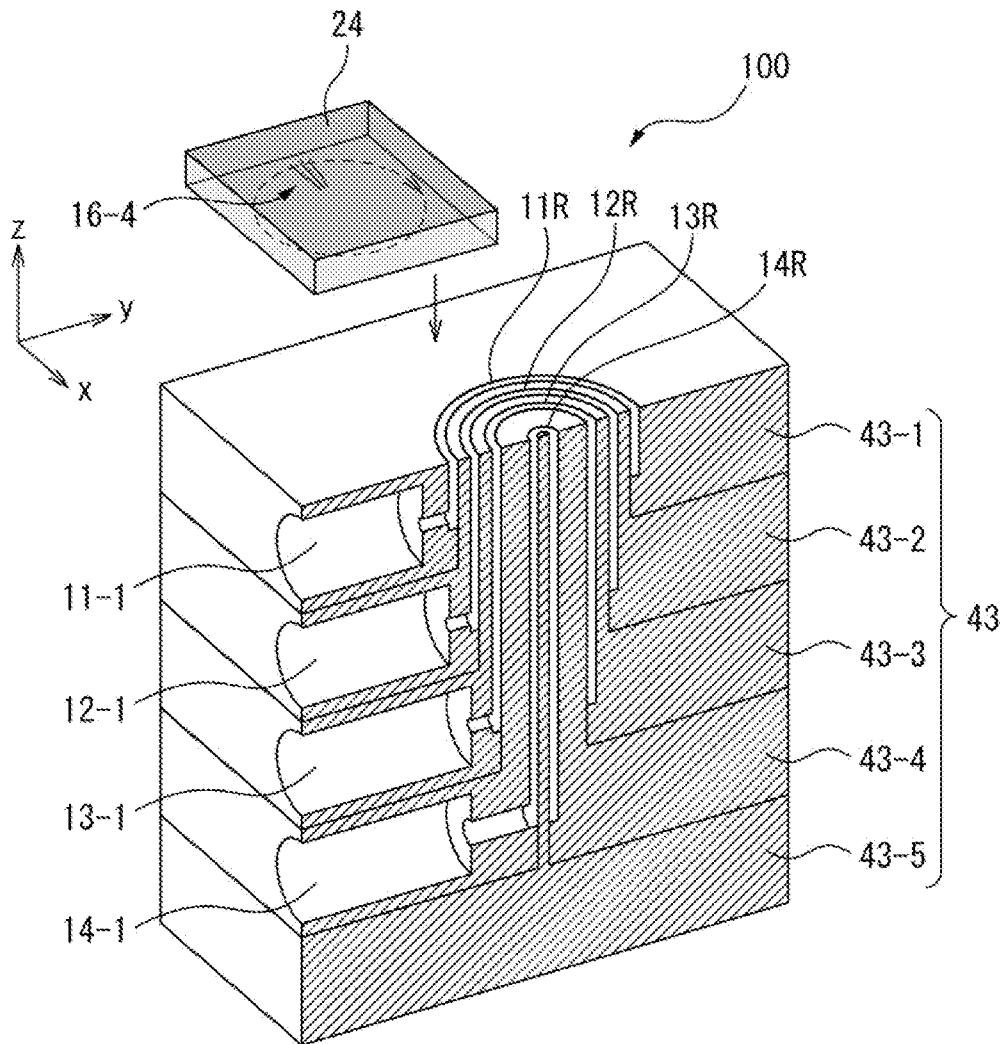
[図11]

図11



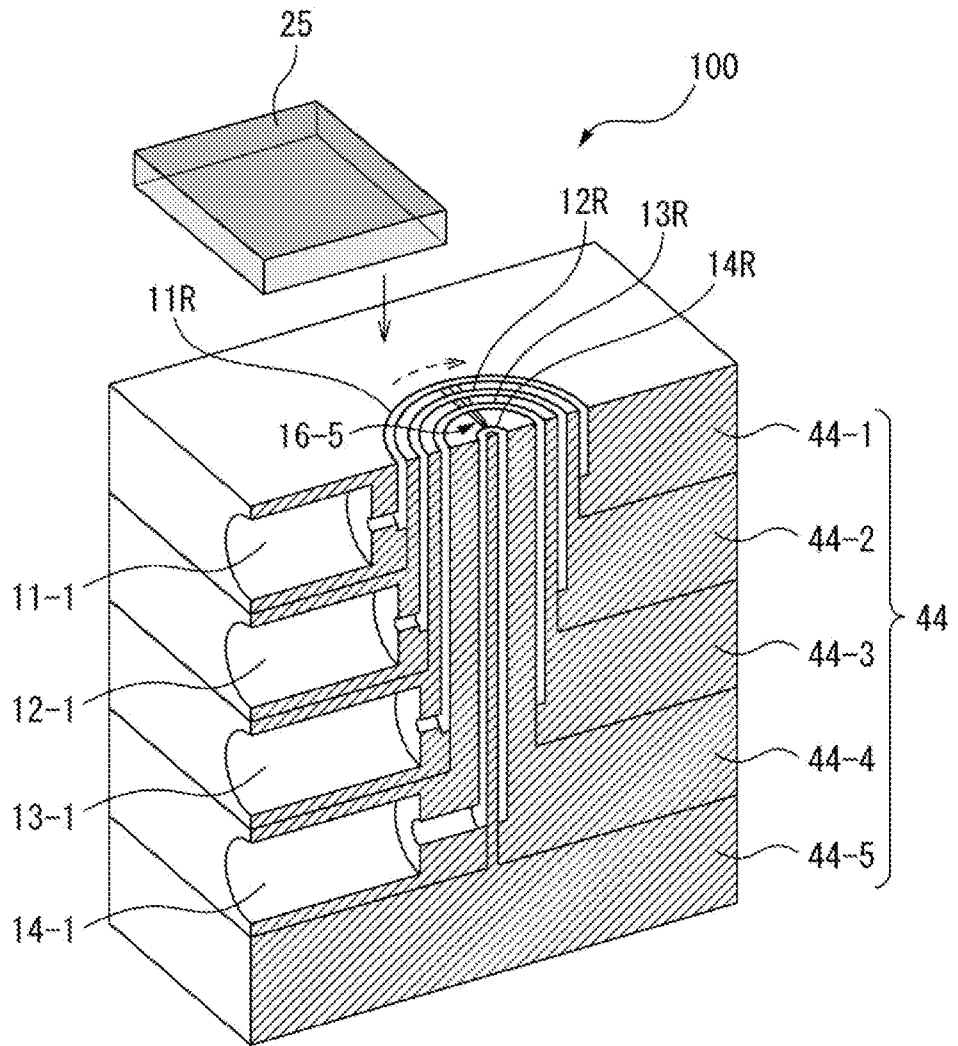
[図12]

図12



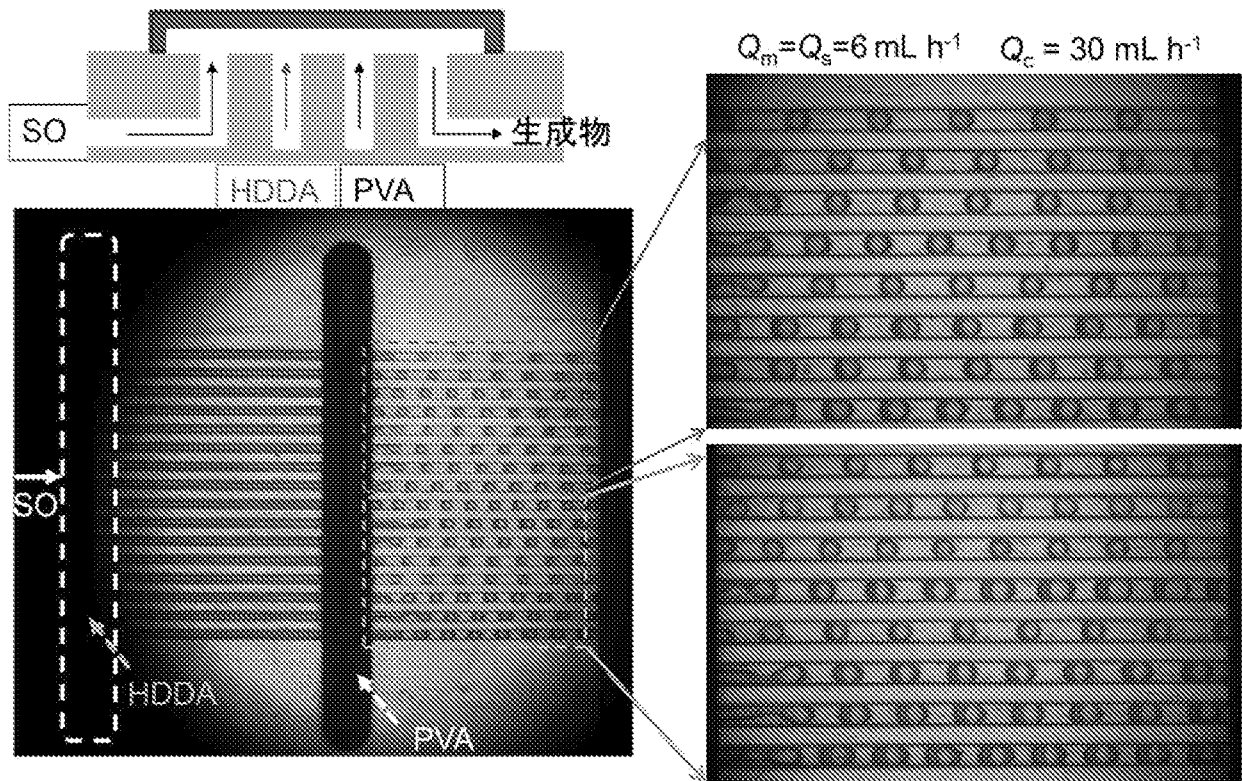
[図13]

図13



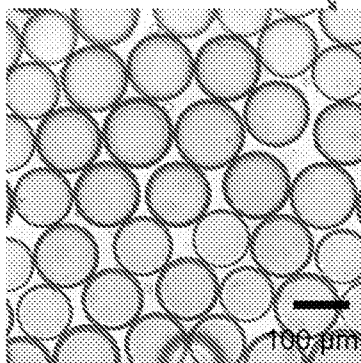
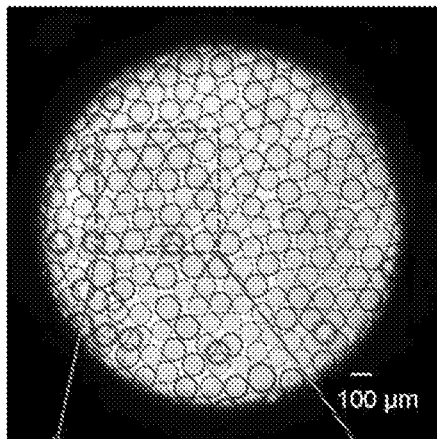
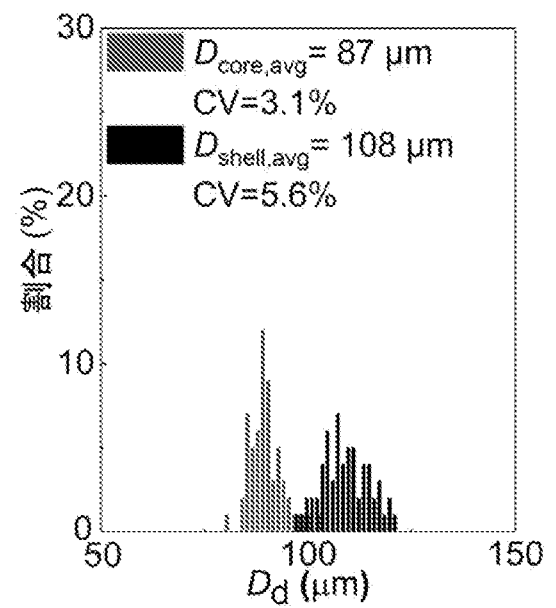
[図14]

図14



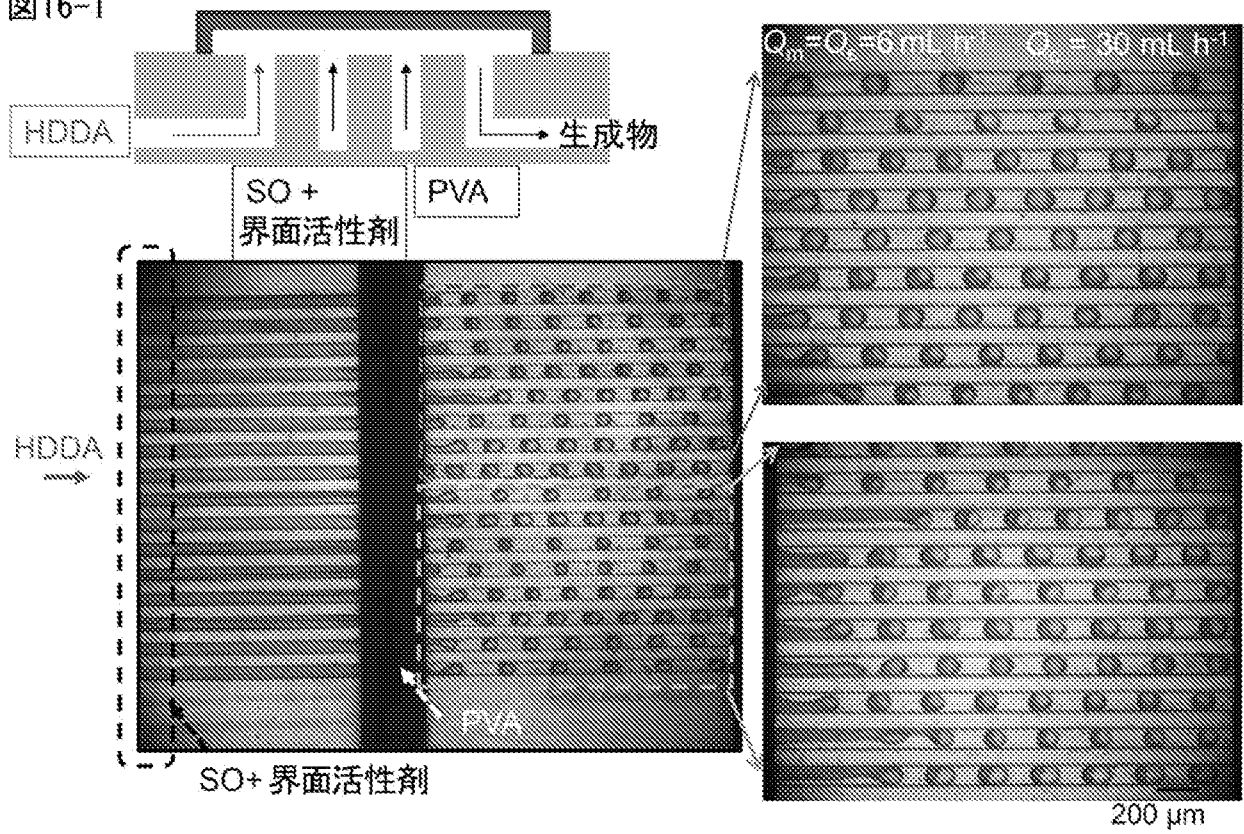
[図15]

図15


 $Q_m = Q_s = 6 \text{ mL h}^{-1}$ $Q_c = 30 \text{ mL h}^{-1}$


[図16-1]

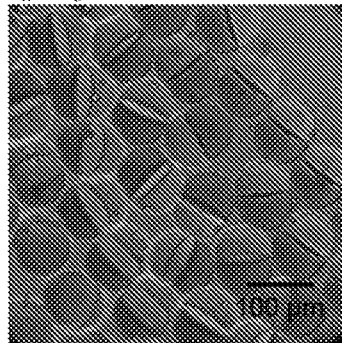
図16-1



[図16-2]

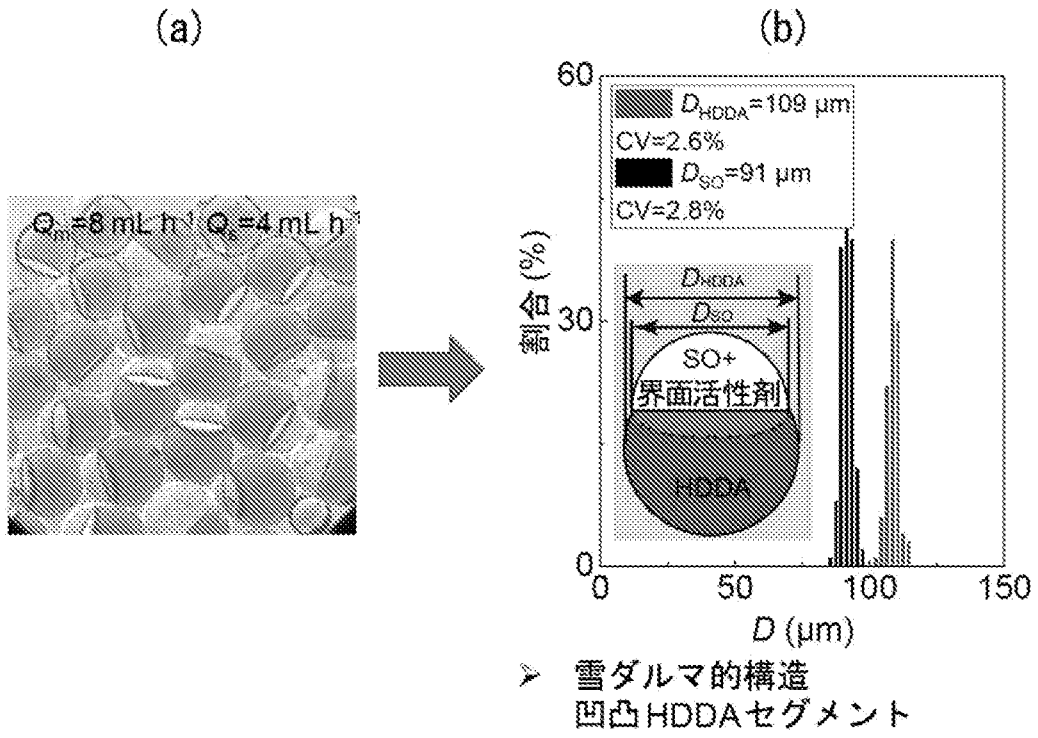
図16-2

$$Q_m = Q_s = 6 \text{ mL h}^{-1} \quad Q_c = 30 \text{ mL h}^{-1}$$



[図17]

図17



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/042781

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<i>B01F 23/41</i> (2022.01)i; <i>B01F 25/40</i> (2022.01)i; <i>B81B 1/00</i> (2006.01)i; <i>B01J 13/00</i> (2006.01)i; <i>B01J 19/00</i> (2006.01)i FI: B01F5/00 D; B01F3/08 A; B01J13/00; B01J19/00 321; B81B1/00		
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) B01F23/00-B01F25/90; B81B1/00; B01J13/00; B01J19/00		
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 1971-2022 Registered utility model specifications of Japan 1996-2022 Published registered utility model applications of Japan 1994-2022		
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	WO 2019/168130 A1 (TOKYO INSTITUTE OF TECHNOLOGY) 06 September 2019 (2019-09-06) claims, paragraphs [0029]-[0061], fig. 1-16	1-15
Y	JP 2005-144356 A (TOSOH CORP) 09 June 2005 (2005-06-09) claims, paragraphs [0018], [0019], [0022]-[0025], [0048], fig. 10-13	1-15
Y	WO 2012/008497 A1 (TOKYO INSTITUTE OF TECHNOLOGY) 19 January 2012 (2012-01-19) claims, paragraphs [0046], [0051], fig. 14-17	4, 11-15
Y	JP 2012-166125 A (TOKYO INSTITUTE OF TECHNOLOGY) 06 September 2012 (2012-09-06) claims, paragraphs [0042], [0053], fig. 1-8	4, 11-15
Y	JP 2013-503742 A (PRESIDENT AND FELLOWS OF HARVARD COLLEGE) 04 February 2013 (2013-02-04) claims, paragraphs [0007], [0016]-[0032], [0073]-[0078], fig. 1	11-15
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> 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 21 January 2022		Date of mailing of the international search report 08 February 2022
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/042781

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2017-82045 A (UNIV TOKYO) 18 May 2017 (2017-05-18) claims, paragraphs [0018], [0019], [0093]-[0098]	14-15
A	JP 2012-20217 A (TOKYO INSTITUTE OF TECHNOLOGY) 02 February 2012 (2012-02-02)	1-15
A	WO 02/068104 A1 (JAPAN SCIENCE AND TECHNOLOGY CORPORATION) 06 September 2002 (2002-09-06)	10-13
A	JP 2004-237177 A (JAPAN SCIENCE & TECHNOLOGY AGENCY) 26 August 2004 (2004-08-26)	10-13
A	JP 2006-508795 A (EHRFELD MIKROTECHNIK BTS GMBH) 16 March 2006 (2006-03-16)	1-15

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2021/042781

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO	2019/168130	A1	06 September 2019	US 2021/0001340 A1 claims, paragraphs [0062]-[0128], fig. 1-16 EP 3760305 A1	
JP	2005-144356	A	09 June 2005	(Family: none)	
WO	2012/008497	A1	19 January 2012	US 2013/0129581 A1 claims, paragraphs [0091], [0100], fig. 14-17 EP 2594332 A1 CA 2805217 A1	
JP	2012-166125	A	06 September 2012	(Family: none)	
JP	2013-503742	A	04 February 2013	US 2012/0199226 A1 claims, paragraphs [0006], [0019]-[0035], [0074]-[0079], fig. 1 WO 2011/028760 A2 CN 102481529 A KR 10-2012-0089662 A	
JP	2017-82045	A	18 May 2017	(Family: none)	
JP	2012-20217	A	02 February 2012	(Family: none)	
WO	02/068104	A1	06 September 2002	US 2004/0068019 A1 US 2006/0077755 A1 US 2006/0079583 A1 US 2006/0079584 A1 US 2006/0079585 A1 US 2010/0327471 A1 EP 1362634 A1 EP 1721658 A2 EP 1447127 A1 EP 1510251 A1 EP 1741482 A2 EP 1745839 A1 CA 2438856 A1	
JP	2004-237177	A	26 August 2004	(Family: none)	
JP	2006-508795	A	16 March 2006	JP 2011-183386 A US 2006/0087917 A1 WO 2004/052518 A2 DE 20218972 U1 KR 10-2005-0085326 A CN 1780681 A	

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） B01F 23/41(2022.01)i; B01F 25/40(2022.01)i; B81B 1/00(2006.01)i; B01J 13/00(2006.01)i; B01J 19/00(2006.01)i FI: B01F5/00 D; B01F3/08 A; B01J13/00; B01J19/00 321; B81B1/00</p>										
<p>B. 調査を行った分野</p>										
<p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） B01F23/00-B01F25/90; B81B1/00; B01J13/00; B01J19/00</p>										
<p>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</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2022年</td> </tr> </table>			日本国実用新案公報	1922 - 1996年	日本国公開実用新案公報	1971 - 2022年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2022年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2022年
日本国実用新案公報	1922 - 1996年									
日本国公開実用新案公報	1971 - 2022年									
日本国実用新案登録公報	1996 - 2022年									
日本国登録実用新案公報	1994 - 2022年									
<p>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）</p>										
<p>C. 関連すると認められる文献</p>										
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	WO 2019/168130 A1 (国立大学法人東京工業大学) 06.09.2019 (2019-09-06) 特許請求の範囲、[0029] - [0061]、図1-16	1-15								
Y	JP 2005-144356 A (東ソー株式会社) 09.06.2005 (2005-06-09) 特許請求の範囲、[0018]、[0019]、[0022] - [0025]、 [0048]、図10-13	1-15								
Y	WO 2012/008497 A1 (国立大学法人東京工業大学) 19.01.2012 (2012-01-19) 特許請求の範囲、[0046]、[0051]、図14-17	4,11-15								
Y	JP 2012-166125 A (国立大学法人東京工業大学) 06.09.2012 (2012-09-06) 特許請求の範囲、[0042]、[0053]、図1-8	4,11-15								
Y	JP 2013-503742 A (プレジデント アンド フェロウズ オブ ハーバード カレッジ) 04.02.2013 (2013-02-04) 特許請求の範囲、[0007]、[0016] - [0032]、[0073] - [0078]、図1	11-15								
Y	JP 2017-82045 A (国立大学法人 東京大学) 18.05.2017 (2017-05-18) 特許請求の範囲、[0018]、[0019]、[0093] - [0098]	14-15								
<p><input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p>										
* 引用文献のカテゴリー	<p>“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</p> <p>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</p> <p>“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</p> <p>“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）</p> <p>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“&” 同一パテントファミリー文献</p>									
国際調査を完了した日	21.01.2022	国際調査報告の発送日 08.02.2022								
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 小久保 勝伊 4Q 9831 電話番号 03-3581-1101 内線 3468									

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	JP 2012-20217 A (国立大学法人東京工業大学) 02.02.2012 (2012 - 02 - 02)	1-15
A	WO 02/068104 A1 (科学技術振興事業団) 06.09.2002 (2002 - 09 - 06)	10-13
A	JP 2004-237177 A (独立行政法人 科学技術振興機構) 26.08.2004 (2004 - 08 - 26)	10-13
A	JP 2006-508795 A (エアフェルト・マイクロテック・パーテーエス・ゲゼルシャフト・ミット・ベシュレンクテル・ハフツング) 16.03.2006 (2006 - 03 - 16)	1-15

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2021/042781

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO 2019/168130 A1	06.09.2019	US 2021/0001340 A1 特許請求の範囲、[0062] - [0128]、図1 - 16 EP 3760305 A1	
JP 2005-144356 A	09.06.2005	(ファミリーなし)	
WO 2012/008497 A1	19.01.2012	US 2013/0129581 A1 特許請求の範囲、[0091]、[0100]、図14 - 17 EP 2594332 A1 CA 2805217 A1	
JP 2012-166125 A	06.09.2012	(ファミリーなし)	
JP 2013-503742 A	04.02.2013	US 2012/0199226 A1 特許請求の範囲、[0006]、[0019] - [0035]、[0074] - [0079]、図1 WO 2011/028760 A2 CN 102481529 A KR 10-2012-0089662 A	
JP 2017-82045 A	18.05.2017	(ファミリーなし)	
JP 2012-20217 A	02.02.2012	(ファミリーなし)	
WO 02/068104 A1	06.09.2002	US 2004/0068019 A1 US 2006/0077755 A1 US 2006/0079583 A1 US 2006/0079584 A1 US 2006/0079585 A1 US 2010/0327471 A1 EP 1362634 A1 EP 1721658 A2 EP 1447127 A1 EP 1510251 A1 EP 1741482 A2 EP 1745839 A1 CA 2438856 A1	
JP 2004-237177 A	26.08.2004	(ファミリーなし)	
JP 2006-508795 A	16.03.2006	JP 2011-183386 A US 2006/0087917 A1 WO 2004/052518 A2 DE 20218972 U1 KR 10-2005-0085326 A CN 1780681 A	