

(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  
2009年10月1日(01.10.2009)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2009/119578 A1

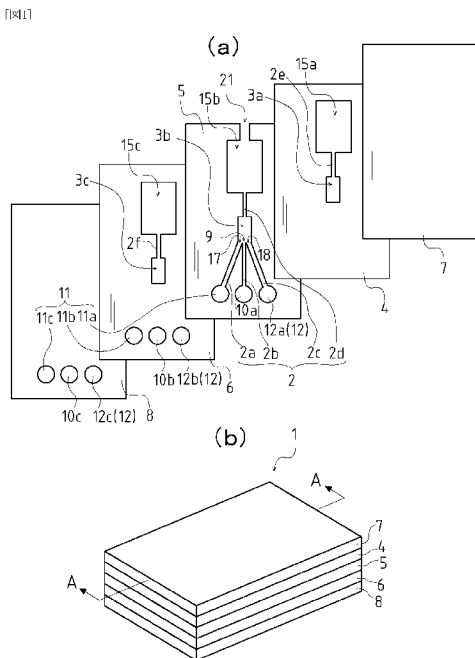
- (51) 国際特許分類:  
B01J 19/00 (2006.01) B01J 13/00 (2006.01)  
B01F 3/08 (2006.01) B81B 1/00 (2006.01)  
B01F 5/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/055816
- (22) 国際出願日: 2009年3月24日(24.03.2009)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願 2008-079375 2008年3月25日(25.03.2008) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 国立大学法人岡山大学(National University Corporation Okayama University) [JP/JP]; 〒7008530 岡山県岡山市津島中一丁目1番1号 Okayama (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 小野 努 (ONO, Tsutomu) [JP/JP]; 〒7008530 岡山県岡山市津島中三丁目1番1号 国立大学法人岡山大学大学院環境学研究所内 Okayama (JP).
- (74) 代理人: 矢野 寿一郎(YANO, Juichiro); 〒5406134 大阪府大阪府中央区城見二丁目1番61号 ツ

イン 2 1 M I D タワー 3 4 階 矢野内外国特許事務所 Osaka (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, 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, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, 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, 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 (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, SE, SI, SK, 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: MICRO-DROPLET DISPENSING DEVICE

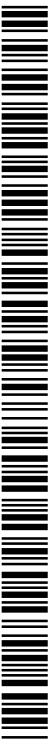
(54) 発明の名称: 微小液滴調製装置



(57) Abstract: Provided is a microreactor of a simple structure wherein monodisperse droplets can be dispensed stably over a long term by making a simple improvement to a conventional microreactor. A microreactor (1) for dispensing liquid droplets by forming a fluid-flowing channel (2) by laminating a plurality of substrates so that fluid becoming a continuous phase shears fluid becoming a dispersed phase, wherein integrally laminated are: a channel substrate (5) in which channels (2) for passing the fluid of continuous phase and the fluid of dispersed phase, respectively, and a merging section (3b) of the channels (2) are opened; spacer substrates (4, 6) bonded to one or both sides of the channel substrate (5) and forming space portions (3a, 3c) each having a predetermined space in one vertical direction with respect to the merging section (3b) of the channel substrate (5); and lid substrates (7, 8) for bonding the spacer substrates (4, 6), respectively, to the opposite sides of the channel substrate (5) or bonding the spacer substrates to one side of the channel substrate (5) and then bonding the spacer substrates from the opposite outsides thereof thus closing the spacer substrates.

(57) 要約: 【課題】従来のマイクロリアクターにシンプルな改良を加えることで、構造が単純で、且つ長期間に渡って安定な単分散液滴が調製可能なマイクロリアクターを提供する。【解決手段】複数の基板を積層して流体が流れる流路2を形成し、連続相となる流体が分散相となる流体を切断することによって液滴を調製するマイクロリアクター1において、前記連続相と前記分散相の各流体が流れる流路2と前記各流路2が合流する合流部3bとが開口形成された流路基板5と、前記流路基板5の両方または一方の面に接合され、前記流路基板5の合流部3bに対して鉛直方向の一方に所定の空間を有するスペーサー基板4・6と、前記流路基板5の両方の面に前記スペーサー基板4・6を各々接合し、または、前記流路基板5の一方の面に前記スペーサー基板を接合して、その両外側から接合して閉塞する蓋基板7・8と、を一体的に積層した。

5と、前記流路基板5の両方または一方の面に接合され、前記流路基板5の合流部3bに対して鉛直方向の一方に所定の空間を有するスペーサー基板4・6と、前記流路基板5の両方の面に前記スペーサー基板4・6を各々接合し、または、前記流路基板5の一方の面に前記スペーサー基板を接合して、その両外側から接合して閉塞する蓋基板7・8と、を一体的に積層した。



WO 2009/119578 A1

## 明 細 書

### 微小液滴調製装置

#### 技術分野

[0001] 本発明は、微細構造を有するマイクロ流路を用いて乳化を行う微小液滴調製装置に関するものである。

#### 背景技術

[0002] 従来、水に油を分散させたり、油を水に分散させるといった乳化にマイクロ流路を利用することが有効であることは、これまで多く示されている。そのなかで、Y字型やT字型のような二次元的な流路を基板に刻み、二流体間の剪断力によって単分散液滴を調製する乳化技術が従来技術として報告されている。また、同様の目的でマイクロチャンネルと呼ばれる微小孔を設けて単分散液滴を調製するマイクロチャンネル乳化法も、従来技術として知られている(例えば、特許文献1参照)。

なかでも、Y字型およびT字型のマイクロ流路を有するマイクロリアクター(微小液滴調製装置)を用いた乳化技術(いわゆるマイクロ流路分岐乳化法)では、マイクロチャンネル乳化法に比べて圧力損失が小さく、流路幅よりも小さな液滴が単分散で得られることから注目されている方法である。

特許文献1:特開2001-181309号公報

#### 発明の開示

#### 発明が解決しようとする課題

[0003] Y字型およびT字型マイクロリアクターでは、二流体の合流部分近傍において連続相となる流体が分散相となる流体を剪断することによって液滴が調製されることが考えられる。連続相を水相、分散相を油相とした場合には、分散相である油相の性質によっては液滴形成が不可能な場合が生じる。これは、流路壁面への油相成分の吸着(付着)が原因と推測される。そこで、安定な液滴を得るために流路壁面全体をオゾンガス処理等により親水化処理して流路壁面への油相成分の吸着を防止する方法も検討されているが、通常の方法による流路壁面の親水化では有効期間が短く(数日程度)、マイクロリアクターを用いて乳化を連続的に行うという乳化装置の連続運転

においては効果的ではない。

[0004] また、従来からある流路を有したマイクロリアクターは、流路が形成された1枚の基板を上下から閉塞する閉塞用の蓋基板で挟んだ構成であったため、油相が上側蓋基板の裏面(流路の天井部)や下側蓋基板の裏面(流路の底部)に付着しながら流れることがあり、単一分散の液滴を調製することが困難であった。

[0005] 本発明は、以上の問題点を鑑みなされたもので、マイクロリアクターにシンプルな改良を加えることで、構造が単純で、且つ長期間に渡って安定な単分散液滴が調製可能な微小液滴調製装置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

[0006] 本発明の微小液滴調製装置においては、  
連続相となる流体が分散相となる流体を剪断することによって液滴を調製する微小液滴調製装置であって、

前記連続相となる流体と前記分散相となる流体とが合流する流路における天井部及び底部の両方が、或いは天井部もしくは底部の少なくとも一方が、前記各流体合流時における流体の流れに対して所定の間隔を有するように形成されたものである。

[0007] 本発明の微小液滴調製装置においては、  
前記流路は、  
前記連続相と前記分散相の各流体が流れる流路と当該各流路が合流する合流部とが開口形成された流路基板と、

前記流路基板の両方または一方の面に接合され、前記流路基板の合流部に対して鉛直方向の一方に所定の空間を有するスペース部を形成するスペーサー基板と、

前記流路基板の両方の面に前記スペーサー基板を各々接合し、または、前記流路基板の一方の面に前記スペーサー基板を接合して、その両外側から接合して閉塞する蓋基板と、

を一体的に積層して形成したものである。

[0008] 本発明の微小液滴調製装置においては、  
前記流路基板に開口形成された前記連続相と前記分散相の各流体が流れる前記各流路の上流側に、前記各流路のそれぞれに連通する所定の開口部を備え、

前記流路基板の両方の面に接合される前記スペーサー基板のどちらか一方と、その外側から接合して閉塞する蓋基板のそれぞれにおいて、前記所定の開口部に対応する位置に開口部を備え、

前記流路基板と、前記開口部を備えたスペーサー基板と、前記開口部を備えた蓋基板とを積層することで、前記各流路のそれぞれに連通する連続相を供給する連続相供給部と分散相を供給する分散相供給部とを形成したものである。

[0009] 本発明の微小液滴調製装置においては、

前記流路基板の両方の面に接合される前記スペーサー基板の前記スペース部を前記流路基板に開口形成された合流部の両外側の対応する位置に配置したものである。

[0010] 本発明の微小液滴調製装置においては、

前記流路基板の前記合流部内の上流側において、連続相が分散相を剪断するのである。

[0011] 本発明の微小液滴調製装置においては、

前記流路基板の両方の面に接合される前記スペーサー基板のそれぞれに形成された前記スペース部が、前記流路基板に開口形成された前記合流部に対応する位置に穿設された凹入部もしくは開口形成された開口部であるものである。

[0012] 本発明の微小液滴調製装置においては、

前記流路基板の両方の面に接合される前記スペーサー基板のそれぞれに形成された前記スペース部が、同形状であるものである。

[0013] 本発明の微小液滴調製装置においては、

前記流路基板の両方の面に接合される前記スペーサー基板は、板厚が同じであるものである。

[0014] 本発明の微小液滴調製装置においては、

前記流路基板の両方の面に接合され、前記流路基板の前記合流部に対して鉛直方向の一方に所定の空間を有する前記スペース部を形成する前記スペーサー基板と、該スペーサー基板を外側から接合して閉塞する前記蓋基板とを一体化して形成し、

前記流路基板の前記合流部の両外側に対応する位置に前記各スペース部を備えるとともに、前記各スペース部が前記流路基板の前記合流部の位置と一致するよう両外側から挟んで一体的に積層したものである。

### 発明の効果

- [0015] 本発明の微小液滴調製装置によれば、液滴の流路壁面への付着を防ぎ、長期間に渡って安定に単分散液滴を調製することができる。
- [0016] 本発明の微小液滴調製装置によれば、粘度や疎水性の高い成分を持つ分散相でも乳化が可能となる。
- [0017] 本発明の微小液滴調製装置によれば、微小液滴調製装置の流路壁面に対して表面処理を施さず、半永久的に安定な乳化を実現できる。

### 図面の簡単な説明

- [0018] [図1]本発明の実施例に係るマイクロリアクターの構成を示す図であり、(a)は各基板の形状を示す平面図、(b)はマイクロリアクターを示す斜視図。
- [図2]スペーサー基板を基板の上下に配置する状態を示す斜視図。
- [図3]図1(b)におけるA-A断面矢視図。
- [図4]マイクロリアクターの別の実施形態を示す断面図。
- [図5]マイクロリアクターにより調製された単分散液滴を示す写真。
- [図6]比較例に係る流路基板の一部を示す写真。
- [図7]比較例に係る液滴を形成しない状態である分散相を示す写真。

### 符号の説明

- [0019] 1 マイクロリアクター(微小液滴調製装置)
- 2 流路
- 2a・2c 連続相流路
- 2b 分散相流路
- 3b 合流部
- 3a・3c スペース部
- 4・6 スペーサー基板
- 5 流路基板

## 7・8 蓋基板

### 発明を実施するための最良の形態

[0020] 以下、本発明の最良の実施形態を図面を参照して説明する。なお、各図において共通する部分には、同一の符号を付し、重複した説明を省略する。また、積層方向を上下方向とする。

本発明に係る微小液滴調製装置は、連続相となる流体により分散相となる流体を切断することによって微小液滴を調製するマイクロリアクター等のマイクロ流路を有する装置のことであり、以下においては、便宜上、マイクロリアクターという。

図1は本発明の実施例に係るマイクロリアクターの構成を示す図であり、(a)は各基板の形状を示す平面分解図、(b)はマイクロリアクターを示す斜視図である。図2はスパーサー基板を流路基板の上下に配置する状態を示す斜視図、図3は図1(b)におけるA-A断面矢視図、図4はマイクロリアクターの別の実施形態を示す断面図、図5はマイクロリアクターにより調製された単分散液滴を示す写真、図6は比較例に係る流路基板の一部を示す写真、図7は比較例に係る液滴を形成しない状態である分散相を示す写真である。

[0021] 本発明に係るマイクロリアクターは、連続相となる流体が分散相となる流体を切断することによって液滴を調製するマイクロリアクターであり、前記連続相となる流体と前記分散相となる流体とが合流する流路における天井部及び底部の両方が、或いは天井部もしくは底部の少なくとも一方が、前記各流体合流時における流体の流れに対して所定の間隔を有するように形成されたものである。

[0022] すなわち、本発明に係るマイクロリアクターは、連続相となる流体が分散相となる流体を切断することによって液滴を調製するために形成された所定の流路を有するものであり、連続相となる流体及び分散相となる流体の各々を、複数に分岐した流路により導き、当該複数の流路を各々所定角度をなすように配置することで、前記各流体を合流させ、前記各流体合流時に作用する切断力を利用して、調製される流体である分散化された分散相(単分散相)の流れに対して所定の間隔を有するように流路を形成したものである。

つまり、本発明に係るマイクロリアクターでは、上記のような各流体を合流させる部

分となる流路形成部において、前記各流体合流時における流体の流れに対して所定の間隔を有するように前記流路形成部の天井部及び底部の両方を、或いは天井部もしくは底部の一方を、形成することにより、分散相である液滴の流路壁面（流路形成部壁面）への付着を防ぎ、長期間に渡って安定に単分散液滴を調製することができる。

なお、天井部及び底部は、その形状を特に限定するものではなく、前記各流体合流時に調製される単分散相が付着しないように、単分散相の流れに対して所定間隔を有するように所定空間を形成できればよい。以下、具体的な実施形態について詳細に説明する。

- [0023] 本実施形態においては、図1(a)に示すようなマイクロ流路形状を有した液滴分散系調製用(O/W型エマルジョン調製用)の積層型マイクロリアクター1(以下、マイクロリアクター1という)を用いて、サイズが揃った微小の液滴である単分散O/W型エマルジョンを調製する過程を具体例として説明する。
- [0024] 本発明のマイクロリアクターの実施形態について図1、図2及び図3を用いて説明する。
- [0025] マイクロリアクター1は、図1(a)(b)に示すように、複数の基板を積層して流体が流れる流路2を形成し、連続相となる流体が分散相となる流体を剪断することによって液滴を調製するマイクロリアクターであり、前記連続相と前記分散相の各流体が合流する合流部3bを有し、前記流路2が開口形成された流路基板5と、前記流路基板5の一方の面(本実施形態では上面)に接合され、前記合流部3bの鉛直方向の上方に所定の空間(間隔)を有している後述するスペース部3aを形成する第一スペーサー基板4と、前記流路基板5の他方の面(本実施形態では下面)に接合され、前記合流部3bの鉛直方向の下方に所定の空間(間隔)を有している後述するスペース部3cを形成する第二スペーサー基板6と、前記第一スペーサー基板4と第二スペーサー基板6の両外側となる上側と下側から接合して閉塞する蓋基板7・8と、を図1(b)に示すように、一体的に積層して構成されている。以下、マイクロリアクター1の構成の詳細について説明する。

なお、本実施形態においては各基板を積層することにより形成される前記流路2の

内壁面において、上側の蓋基板7内側に位置する面を便宜上、天井部7aとし、下側の蓋基板内側に位置する面を便宜上、底部8aとする(図3参照)。

また、本実施形態においては、流路基板5の両方の面に前記第一スペーサー基板4と第二スペーサー基板6を各々接合したものであるが、特に限定するものではなく、前記第一スペーサー基板4もしくは第二スペーサー基板6のどちらか一方を前記流路基板5の一方の面に接合し、他方の面を蓋基板7(8)にて接合するように構成してもかまわない。

[0026] 流路基板5は、薄いステンレス製(厚さ $50\mu\text{m}$ )の板状部材であり、所定パターンの流路2が開口されている。前記流路2は、分散相(本実施形態においては油相)を流す分散相流路2b(流路幅 $50\mu\text{m}$ )と、該分散相流路2bの両側に位置する連続相(本実施例においては水相)を流す二本の連続相流路2a・2c(流路幅 $70\mu\text{m}$ )と、後述する合流部3bと、後述する液滴形成流路2dとから構成されている。分散相流路2bの一端は、該分散相流路2bの上流側に配置されている平面視丸状に開口形成されている所定の開口部である分散相供給部10aに連通している。分散相流路2bの他端は、該分散相流路2bの下流側に配置されている平面視略四角状の合流部3bに連通している。また、連続相流路2a・2cのそれぞれの一端は、該連続相流路2a・2cの上流側に配置されている平面視丸状に開口形成されている所定の開口部である連続相供給部11a・12aに連通している。連続相流路2a・2cは、前記分散相流路2bの両側に配置され、下流側に行くに従って徐々に分散相流路2bに近づき、連続相流路2a・2cの他端は、該分散相流路2bの下流側に配置されている平面視略四角状の合流部3bに連通している。また、分散相流路2bの他端には、油相が合流部3bに吐出される分散相吐出口9を有しており、該分散相吐出口9の水平方向両隣には、連続相流路2a・2cのそれぞれの他端となる連続相吐出口17・18が隣接して配置されている。また、合流部3bは微小液滴を形成する液滴形成流路2dを介して液滴を溜める平面視四角状の溜り部15bに連通している。また、溜り部15bの下流側には液滴排出部21が設けられている。

なお、流路2を構成する流路2a・2b・2c・2dの形状及び配置パターンとしては、特に本実施形態に限定するものではなく、乳化の調製条件等により適宜変更してもか



まわらない。例えば、流路2の形状としては直線状だけでなく、クランク状、蛇行状等であっても良い。また、流路2の配置パターンとしてはY字状、T字状等であっても良い。

[0027] 第一スペーサー基板4は、薄いステンレス製(厚さ $50\mu\text{m}$ )の板状部材であり、図1(a)に示すように、前記流路基板5の合流部3b、液滴形成流路2d及び溜り部15bのそれぞれの鉛直方向に対応する位置に所定パターンの開口部を有している。すなわち、第一スペーサー基板4の所定パターンの開口部は、前記流路基板5の合流部3bの鉛直方向の上方に所定の空間を有するように開口形成された平面視四角状のスペース部3aと、前記流路基板5の溜り部15bの鉛直方向の上方に所定の空間を有するように開口形成された平面視四角状の溜り部15aと、前記流路基板5の液滴形成流路2dの鉛直方向の上方に所定の空間を有するように開口形成された液滴形成流路2eと、から構成されている。また、前記スペース部3aは、液滴形成流路2eを介して溜り部15aと連通している。

[0028] 第二スペーサー基板6は、薄いステンレス製(厚さ $50\mu\text{m}$ )の板状部材であり、図1(a)に示すように、前記流路基板5の合流部3b、液滴形成流路2d、溜り部15b、分散相供給部10a及び連続相供給部11a・12aに鉛直方向に対応する位置に所定パターンの開口部を有している。すなわち、第二スペーサー基板6の所定パターンの開口部は、前記流路基板5の合流部3bの鉛直方向の下方に所定の空間を有するように開口形成された平面視四角状のスペース部3cと、前記流路基板5の溜り部15bの鉛直方向の下方に所定の空間を有するように開口形成された平面視四角状の溜り部15cと、前記流路基板5の液滴形成流路2dの鉛直方向の下方に所定の空間を有するように開口形成された液滴形成流路2fと、第二スペーサー基板6が前記流路基板5の下側に配置され接合したときに、分散相供給部10a及び連続相供給部11a・12aと対応した位置に開口形成された平面視丸状の分散相供給部10b及び連続相供給部11b・12bとから構成されている。また、前記スペース部3cは、前記液滴形成流路2fを介して溜り部15cと連通している。

[0029] 蓋基板7・8は、ステンレス製(厚さ5mm)あるいは石英ガラスの板状部材であり、図1(a)に示すように、前記第一スペーサー基板4と、前記流路基板5と、前記第二スペー

一サスペンダー基板6とが順に積層された状態において、両外側となる上側と下側とを閉塞するように接合される。蓋基板7は、開口部を有しないが、蓋基板8には、該蓋基板8が前記流路基板5の下側に配置され接合したときに、分散相供給部10b及び連続相供給部11b・12bと対応した位置に開口形成された平面視丸状の分散相供給部10c及び連続相供給部11c・12cを有している。基板5・6・8が積層されることで、分散相供給部10c及び連続相供給部11c・12cと、前述した流路基板5が有する分散相供給部10a及び連続相供給部11a・12aと、第二スペンダー基板6が有する分散相供給部10b及び連続相供給部11b・12bとから分散相供給部10及び連続相供給部11・12が形成されることになり、前記分散相供給部10及び前記連続相供給部11・12が分散相及び連続相を供給する図示せぬ供給手段と接続される。

なお、本実施形態においては、第二スペンダー基板6と蓋基板8とに平面視丸状の開口部を形成して、マイクロリアクター1の下側から分散相と連続相を図示せぬ供給手段により供給すべく分散相供給部10及び連続相供給部11・12を設けたが、特に限定するものではなく第一スペンダー基板4と蓋基板7のそれぞれに分散相供給部10a及び連続相供給部11a・12aに対応した位置に平面視丸状の開口部を開口形成して、マイクロリアクター1の上側から分散相と連続相を図示せぬ供給手段により供給すべく分散相供給部及び連続相供給部を設けてもかまわない。

[0030] こうして、前記流路基板5と、前記第一スペンダー基板4と、前記第二スペンダー基板6とは、図2に示すように積層されている。そして、各基板5・6・8の各供給部10a・11a・12a、10b・11b・12b及び10c・11c・12cと、各基板4・5・6の合流部3b及びスペース部3a・3cと、各基板4・5・6の各液滴形成流路2d・2e・2fと、各基板4・5・6の各溜り部15a・15b・15cとは、それぞれの開口部の位置を一致させるようにして積層できるように構成されている。

[0031] 各基板4・5・6・7・8間を接合することで、前記流路基板5、前記第一スペンダー基板4、前記第二スペンダー基板6、前記蓋基板7・8を、図1(b)に示すように、積層してマイクロリアクター1を形成することができる。このように各基板4・5・6・7・8を積層して一体的に形成されたマイクロリアクター1の各基板4・5・6・7・8間は面接触により密着状態となっており、さらに図示せぬ固定部材によりマイクロリアクター1周囲を固定

することで、流路2に流体を流しても各基板4・5・6・7・8間の界面から、各供給部10・11・12から供給される油相や水相が染み出すことなくマイクロ流路として機能することができる。

[0032] 次に、各基板4・5・6・7・8を積層してマイクロリアクター1を形成した状態について図3を用いて説明する。図3は、図1(b)に示すマイクロリアクター1の短手方向の中心におけるA-A矢視断面図である。

[0033] 図3に示すように、各基板4・5・6・7・8間を積層してマイクロリアクター1を形成した状態において、第一スペーサー基板4のスペース部3aと、流路基板5の合流部3bと、第二スペーサー基板6のスペース部3cとがマイクロリアクター1内の略中央部で微小空間である合流部3を形成する。すなわち、合流部3は、前記第一スペーサー基板4のスペース部3aと、前記第二スペーサー基板6のスペース部3cと、を前記流路基板5に開口形成された合流部3bの両側となる上側と下側の対応する位置に配置したことで形成されたものである。また、第一スペーサー基板4に開口形成されたスペース部3aは、前記合流部3の上部空間を形成する。また、第二スペーサー基板6に開口形成されたスペース部3cは、前記合流部3の下部空間を形成する。また、第一スペーサー基板4の液滴形成流路2eと、流路基板5の液滴形成流路2dと、第二スペーサー基板6の液滴形成流路2fとが液滴形成流路19を形成する。また、第一スペーサー基板4の溜り部15aと、流路基板5の溜り部15bと、第二スペーサー基板6の溜り部15cとがマイクロリアクター1内で微小空間である溜り部15を形成する。前述した液滴形成流路19は、微小空間である前記合流部3と、該合流部3の下流側に位置する微小空間である溜り部15とを連通する流路となっている。

また、基板5・6・8が積層された状態において、流路基板5の分散相供給部10a及び連続相供給部11a・12aと、第二スペーサー基板6の分散相供給部10b及び連続相供給部11b・12bと、蓋基板8の分散相供給部10c及び連続相供給部11c・12cと、が分散相を供給する分散相供給部10及び連続相を供給する連続相供給部11・12を形成する。分散相供給部10は、該分散相供給部10の上部空間となる分散供給部10aから分散相流路2bを介して前述した微小空間である合流部3と連通している。また、連続相供給部11・12のそれぞれは、該連続相供給部11・12の各上部空間と

なる連続相供給部11a・12aから連続相流路2a・2cを介して前述した微小空間である合流部3と連通している。

なお、図3に示すマイクロリアクター1の断面図においては、図1(b)に示すマイクロリアクター1の短手方向の中心部におけるA-A矢視断面図を示したものであるため、前記分散相供給部10と分散相流路2bの断面部分を示している。

[0034] このように、第一スペーサー基板4と第二スペーサー基板6を、流路基板5の上下の面に接合して積層したことにより、流路基板5の合流部3bの鉛直方向の上方に所定空間を有する上側スペース部3aと、流路基板5の合流部3bの鉛直方向の下方に所定空間を有する下側スペース部3cとを設けることが可能となる。すなわち、これら上側スペース部3a及び下側スペース部3cを設けたことにより、分散相流路2bの吐出口9付近に、図3に示すように段差部4a・6aを設けた形状となり、換言すれば、分散相吐出口9の開口部上端及び下端よりも外側に所定間隔(本実施形態では、基板4・6の膜厚分となる50  $\mu$  m)拡大した形状となっている。

[0035] また、分散相及び連続相を供給する図示せぬ供給手段が、分散相供給部10及び連続相供給部11・12に接続されている。この供給手段は、複数のシリンジを有するシリンジポンプから構成されており、該シリンジポンプの各シリンジがチューブを介して前記各供給部10・11・12に接続されている。そして、各シリンジ内に連続相となる流体と分散相となる流体とを充填し、図示せぬポンプをコントローラにより駆動させて各流体を所定の流量及び流速にてマイクロリアクター1の各供給部10・11・12に供給することが可能となっている。

[0036] 次に、前述したマイクロリアクター1と同様の機能を有するマイクロリアクターの別実施形態について図4を用いて説明する。

[0037] マイクロリアクター30は、図4に示すように、前述したマイクロリアクター1を構成している第一スペーサー基板4と蓋基板7とを一体化したものである第一スペーサー基板14と、第二スペーサー基板6と蓋基板8を一体化して形成したものである第二スペーサー基板16とを、流路基板5の合流部3bの位置と一致するように両外側から挟んで一体的に積層することにより構成されている。

[0038] 第一スペーサー基板14は、ステンレス製(厚さ5mm)の板状部材であり、図4に示

すように、前記流路基板5の合流部3b、液滴形成流路2d及び溜り部15bに鉛直方向に対応する位置に所定パターンに穿設された凹入部を有している。すなわち、第一スペーサー基板14の所定パターンの凹入部は、前記流路基板5の合流部3bの鉛直方向の上方に所定の空間を有するように穿設形成された平面視四角状のスペース部13aと、前記流路基板5の溜り部15bの鉛直方向の上方に所定の空間を有するように穿設形成された平面視四角状の溜り部25aと、前記流路基板5の液滴形成流路2dの鉛直方向の上方に所定の空間を有するように穿設形成された液滴形成流路20eと、から構成されている。また、前記スペース部13aは、前記液滴形成流路20eを介して溜り部25aと連通している。また、各凹入部であるスペース部13a、液滴形成流路20e及び溜り部25aの深さd1は、 $50\mu\text{m}$ である。

[0039] 第二スペーサー基板16は、ステンレス製(厚さ5mm)の板状部材であり、図4に示すように、前記流路基板5の合流部3b、液滴形成流路2d、溜り部15b、分散相供給部10a及び連続相供給部11a・12aに鉛直方向に対応する位置に所定パターンに穿設された凹入部を有している。すなわち、第二スペーサー基板16の所定パターンの凹入部は、前記流路基板5の合流部3bの鉛直方向の下方に所定の空間を有するように穿設形成された平面視四角状のスペース部13cと、前記流路基板5の溜り部15bの鉛直方向の下方に所定の空間を有するように穿設形成された平面視四角状の溜り部25cと、前記流路基板5の液滴形成流路2dの鉛直方向の下方に所定の空間を有するように穿設形成された液滴形成流路20fと、第二スペーサー基板16が前記流路基板5の下側に配置され接合したときに、分散相供給部10a及び連続相供給部11a・12aと対応した位置に開口形成された平面視丸状の分散相供給部10d及び連続相供給部(図示せず)とから構成されている。また、前記スペース部13cは、前記液滴形成流路20fを介して溜り部25cと連通している。また、各凹入部であるスペース部13c、液滴形成流路20f及び溜り部25cの深さd2は、 $50\mu\text{m}$ である。つまり、前記第一スペーサー基板14及び前記第二スペーサー基板16のそれぞれに形成されたスペース部13aとスペース部13cとが、同形状である。

なお、図4に示すマイクロリアクター30の断面図においては、マイクロリアクター30の短手方向の中心部における断面図を示したものであるため、前記分散相供給部1

0と分散相流路2bの断面部分を示している。

[0040] このように、第一スペーサー基板14と第二スペーサー基板16を、流路基板5の上下の面に接合して積層したことにより、流路基板5の合流部3bの鉛直方向の上方に所定空間を有する上側スペース部13aと、流路基板5の合流部3bの鉛直方向の下方に所定空間を有する下側スペース部13cとを設けることが可能となる。すなわち、これら上側スペース部13a及び下側スペース部13cを設けたことにより、分散相流路2bの吐出口9付近に、図4に示すように段差部14a・16aを設けた形状となり、換言すれば、分散相吐出口9の開口部上端及び下端よりも外側に所定間隔(本実施形態では、基板14・16に穿設された凹入部の深さ分となる50  $\mu$  m)拡大した形状となっている。

[0041] 各基板14・5・16間を接合することで、前記流路基板5、前記第一スペーサー基板14、前記第二スペーサー基板16を、図4に示すように、積層してマイクロリアクター30を形成することができる。このマイクロリアクター30の内部構造(内部空間)は、マイクロリアクター1と同形状のものであり、その機能も同一であるため、説明は省略する。

なお、流路基板5の両側を第一スペーサー基板14及び第二スペーサー基板16で挟むように積層するだけでなく、流路基板5の上側を第一スペーサー基板4と蓋基板7とを積層して、流路基板5の下側を前述した第二スペーサー基板16を配置するように積層してもかまわない。すなわち、第一スペーサー基板及び第二スペーサー基板のそれぞれに形成されたスペース部の形状が、前記流路基板5に開口形成された前記合流部3bに対応する位置に穿設された凹入部もしくは開口形成された開口部のどちらであってもかまわない。

[0042] また、流路2の近傍に加熱もしくは冷却手段を設けてマイクロリアクター1を構成することも可能である。

[0043] 以上のようにマイクロリアクター1を構成することによって、均一かつ微小な液滴の調製を行うことが可能となる。以下に、上述したマイクロリアクター1を用いて液滴の調製を行った実施例について説明する。

#### 実施例

[0044] 前述した図示せぬ供給手段により、分散相である油相(本実施例ではポリマーを溶

解したドデカン溶液)と連続相である水相(本実施例では1wt%ドデシル硫酸ナトリウム水溶液)がマイクロリアクター1の分散相供給部10と連続相供給部11・12の各々より注入され、油相と水相の各々が所定の流量及び流速で分散相流路2bと連絡相流路2a・2cを流れる。油相が流路2bの吐出口9から吐出されるとともに、該吐出口の両隣の連続相吐出口17・18から水相が吐出されて、吐出口9から吐出される油相を斜め方向から剪断していく。すなわち、前記流路基板5の前記合流部3b内の上流側において、連続相が分散相を剪断する。この際に、油相はスペーサー基板4・6により形成された上下スペース部3a・3c(段差部4a・6a)を設けたことにより、従来のように油相が蓋基板7内面である天井部7aや蓋基板8内面である底部8aと接触しながら流れることなく、水相により油相の外側が包まれた状態(いわゆるオイル・イン・ウォーター:O/W)で、糸状の液滴になりつつ、液滴形成流路2d・2e・2fへと移動する。そうして、該液滴形成流路19(2d・2e・2f)の吐出口より溜り部15(15a・15b・15c)へと均一かつ微小な液滴(エマルション)が吐出される。こうして、溜り部15(15a・15b・15c)に溜められた液滴は液滴排出部21から排出されて図示しない貯留容器へと送られる。このように、本実施例に係るマイクロリアクター1を用いて調製された液滴をシャーレに載せ、実体顕微鏡(光学顕微鏡)にて観察するとともに、液滴径・分散度(CV値)を測定したところ、図5に示すように、最少液滴径 $14.2\mu\text{m}$ 、分散度8.51%である均一な液滴が調製されたことが確認できた。

- [0045] このように、本実施例に係るマイクロリアクター1では、第一スペーサー基板4及び第二スペーサー6とで流路基板5を挟むことによつて分散相流路2bの吐出口9から吐出される分散相溶液(油相溶液)が流路2の天井部7a及び底部8aと接触せずに連続相である水相によつて剪断されるため、安定な液滴調製が可能になる。当然ながら前述したマイクロリアクター30はマイクロリアクター1と同形状であるため、同様に安定な液滴調製を行うことが可能である。

### 比較例

- [0046] 図6において、本比較例で用いた通常の単分散液滴調製が可能なマイクロ流路基板を示す。

図6に示す前述した基板5と略同様のパターンの開口部を有した流路基板を使用し

、実施例1で用いたスペーサー基板4・6を用いないで流路基板の上下を直接蓋基板7・8で閉塞して構成したマイクロリアクターにより液滴の調製を行った比較例について図6及び図7を用いて説明する。

[0047] 上述したマイクロリアクターを用いて実施例1と同様の溶液組成(油相:ポリマーを溶解したドデカン溶液、水相:1wt%ドデシル硫酸ナトリウム水溶液)及び同様の操作条件において、液滴の調製を行ったところ、最適な流量条件下で行った場合でも図7の矢印部分が示すように、液滴形成流路2dから液滴が連続した状態で吐出された。結果として図5に示すような均一な液滴を形成することができなかった。原因としては、本比較例で用いたマイクロリアクターでは、分散相流路2bの吐出口9から押出される分散相溶液(油相)がマイクロリアクター1の蓋基板7・8内面と接触したまま連続相流路2a・2cを介して分散相流路2bの両側から進入してくる連続相である水相によって剪断されるため、分散相の性質によりうまく剪断できずに蓋基板7・8内面を伝わってしまうために均一な液滴が形成されなかったと考えられる。

[0048] 前述した実施例と比較例を比べることで明らかなように、マイクロリアクター1は、流路基板5の上下にスペーサー基板4・6を配設することで合流部3b部分の鉛直方向の上下に上下スペース部3a・3cを設けたので、すなわち、分散相の吐出口9に段差部4a・6aを設けたので、上述したように水相による油相剪断時に、油相が蓋基板7・8内面(天井部7a及び底部8a)と接触することがなくなり、安定な単分散液滴を調製することを可能にしている。また、スペーサー基板4・6の導入により流路壁面のオゾン処理等の表面処理などを必要としない安定な単分散液滴を調製することを可能にしたのである。

[0049] このように、複数の基板を積層して流体が流れる流路2を形成し、連続相となる流体が分散相となる流体を剪断することによって液滴を調製するマイクロリアクター1であって、前記連続相と前記分散相の各流体が流れる流路2a・2b・2cと前記各流路2a・2b・2cが合流する合流部3bとが開口形成された流路基板5と、前記流路基板5の一方の面に接合され、前記合流部3bの鉛直方向の一方に所定の間隔を保持するスペース部3aを形成する第一スペーサー基板4と、前記流路基板5の他方の面に接合され、前記合流部3bの鉛直方向の他方に所定の間隔を保持するスペース部3cを形成



する第二スペーサー基板6と、前記第一スペーサー基板4と第二スペーサー基板6の両外側から接合して閉塞する蓋基板7・8と、を一体的に積層したマイクロリアクター1を構成としたことにより、液滴の流路壁面への付着を防ぎ、長期間に渡って安定に単分散液滴を調製することができる。さらに、粘度や疎水性の高い成分を持つ分散相でも乳化が可能となる。マイクロリアクター1の流路壁面に対して表面処理を施さず、半永久的に安定な乳化を実現できる。また、積層型のマイクロリアクター1としたことにより、製造しやすく、また分解が容易であるためメンテナンスもし易い。

[0050] また、本発明においては、シンプルな改良で、従来、乳化が困難な材料組成でも乳化を行うことが可能になる。また、平板を積層するタイプのマイクロリアクターにおいては、三次元的な流動状態を考慮した設計を可能にする。

[0051] また、本発明においては、オゾン処理等の流路壁面の表面処理などを必要としないで長期間に渡って安定に単分散液滴を調製することができる。

[0052] 当然ながら、流路2の分散相を流す分散相流路2bに、分散相として水相を流し、かつ、連続相を流す連続相流路2a・2cに、連続相として油相を流してW/O型(ウォーター・イン・オイル型)のエマルジョンを調製することも可能である。

[0053] また、既存のマイクロリアクターに本発明のごとくスペーサー基板を挿入するというシンプルな改良を加えることで、マイクロリアクターが要求される小型化を維持しつつ、構造が単純で、且つ長期間に渡って安定な単分散液滴が調製可能なマイクロリアクターを提供することができる。

[0054] また、本実施形態においては、理解に供しやすくするために単一のマイクロリアクター1について説明したが、特に限定するものではなく、例えばマイクロリアクター1を10~20階建てとなるように複数積み重ねて(いわゆるナンバリングアップを行って)高層型のマイクロリアクターを構成することも可能である。この場合、大量の液滴を調製することが可能となり、液滴の量産化が可能となる。

[0055] なお、本発明は、上記実施例に限定されるものではなく、本発明の趣旨に基づいて種々の変形が可能であり、これらを本発明の範囲から排除するものではない。

#### 産業上の利用可能性

[0056] 本発明は、 $\mu$ -TAS、Lab-on-A-chip、マイクロリアクターに代表される微細

構造を有するマイクロ流体素子を用いた乳化装置、微小液滴を利用した単分散微粒子およびゲル粒子合成、二流体を分散しあうマイクロリアクター等のマイクロ流路を有する装置等に広く適用することができる。

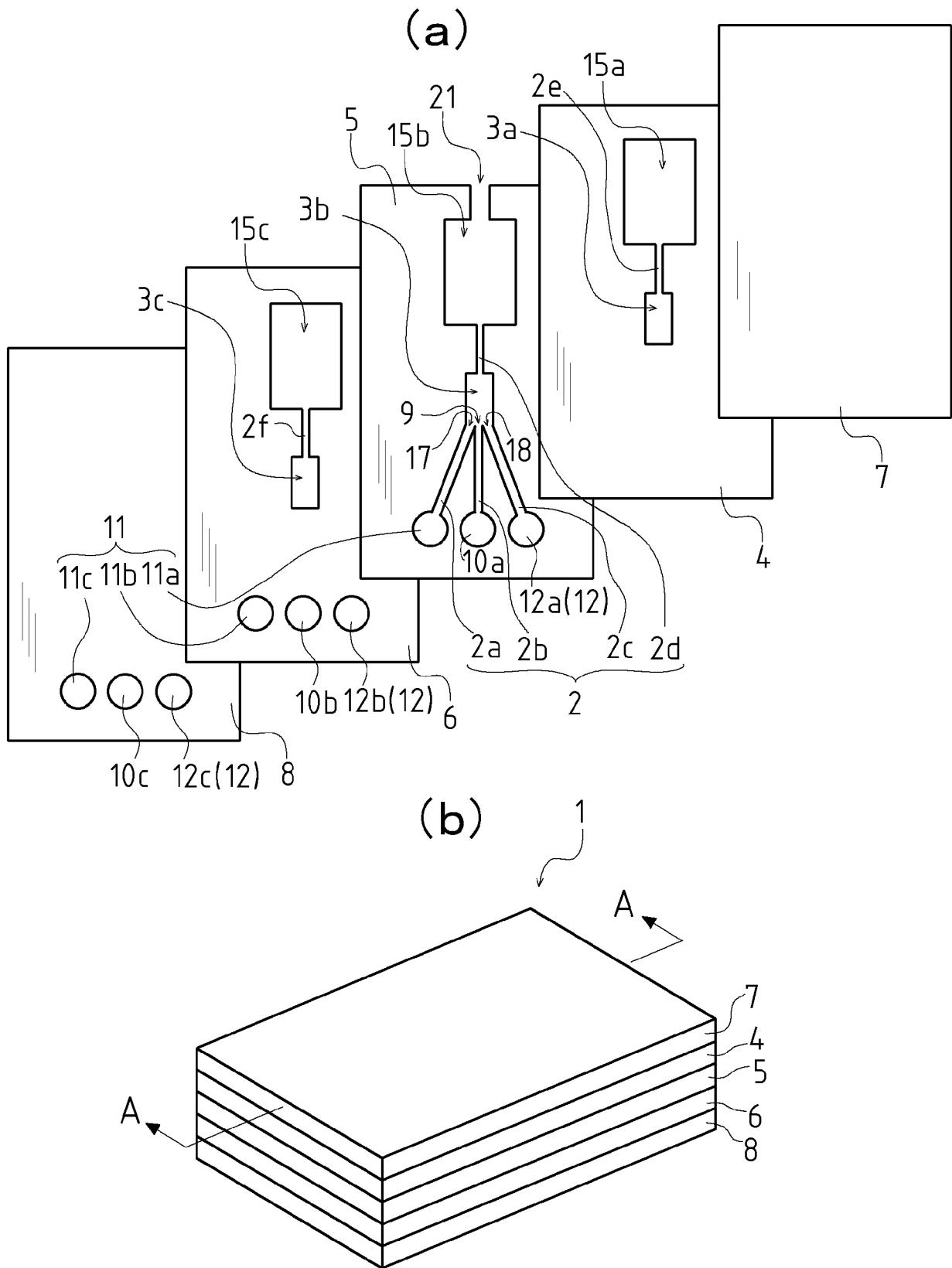
## 請求の範囲

- [1] 連続相となる流体が分散相となる流体を切断することによって液滴を調製する微小液滴調製装置であつて、
- 前記連続相となる流体と前記分散相となる流体とが合流する流路における天井部及び底部の両方が、或いは天井部もしくは底部の少なくとも一方が、前記各流体合流時における流体の流れに対して所定の間隔を有するように形成されたことを特徴とする微小液滴調製装置。
- [2] 前記流路は、
- 前記連続相と前記分散相の各流体が流れる流路と前記各流路が合流する合流部とが開口形成された流路基板と、
- 前記流路基板の両方または一方の面に接合され、前記流路基板の合流部に対して鉛直方向の一方に所定の空間を有するスペース部を形成するスペーサー基板と、
- 前記流路基板の両方の面に前記スペーサー基板を各々接合し、または、前記流路基板の一方の面に前記スペーサー基板を接合して、その両外側から接合して閉塞する蓋基板と、
- を一体的に積層して形成したことを特徴とする請求項1に記載の微小液滴調製装置。
- [3] 前記流路基板に開口形成された前記連続相と前記分散相の各流体が流れる前記各流路の上流側に、前記各流路のそれぞれに連通する所定の開口部を備え、
- 前記流路基板の両方の面に接合される前記スペーサー基板のどちらか一方と、その外側から接合して閉塞する蓋基板のそれぞれにおいて、前記所定の開口部に対応する位置に開口部を備え、
- 前記流路基板と、前記開口部を備えたスペーサー基板と、前記開口部を備えた蓋基板とを積層することで、前記各流路のそれぞれに連通する連続相を供給する連続相供給部と分散相を供給する分散相供給部とを形成したことを特徴とする請求項1または請求項2に記載の微小液滴調製装置。
- [4] 前記流路基板の両方の面に接合される前記スペーサー基板の前記スペース部を前記流路基板に開口形成された合流部の両外側の対応する位置に配置したことを

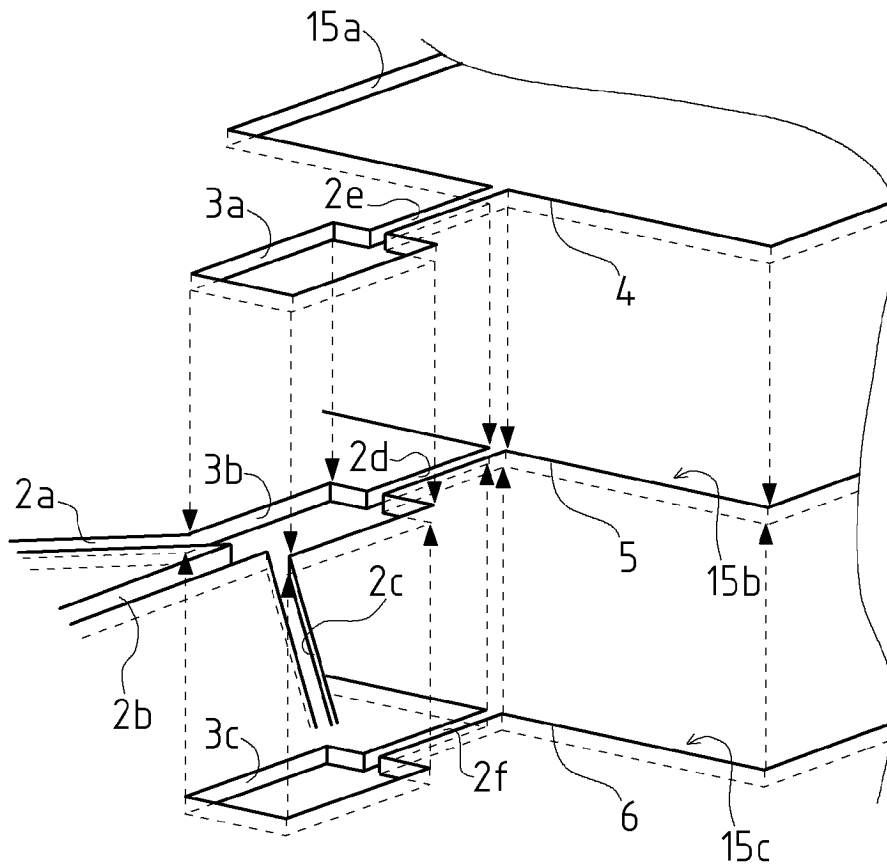
特徴とする請求項1乃至請求項3の何れか一項に記載の微小液滴調製装置。

- [5] 前記流路基板の前記合流部内の上流側において、連続相が分散相を剪断することを特徴とする請求項1乃至請求項4の何れか一項に記載の微小液滴調製装置。
- [6] 前記流路基板の両方の面に接合される前記スペーサー基板のそれぞれに形成された前記スペース部が、前記流路基板に開口形成された前記合流部に対応する位置に穿設された凹入部もしくは開口形成された開口部であることを特徴とする請求項1乃至請求項5の何れか一項に記載の微小液滴調製装置。
- [7] 前記流路基板の両方の面に接合される前記スペーサー基板のそれぞれに形成された前記スペース部が、同形状であることを特徴とする請求項1乃至請求項6の何れか一項に記載の微小液滴調製装置。
- [8] 前記流路基板の両方の面に接合される前記スペーサー基板は、板厚が同じであることを特徴とする請求項1乃至請求項7の何れか一項に記載の微小液滴調製装置。
- [9] 前記流路基板の両方の面に接合され、前記流路基板の前記合流部に対して鉛直方向の一方に所定の空間を有する前記スペース部を形成する前記スペーサー基板と、該スペーサー基板を外側から接合して閉塞する前記蓋基板とを一体化して形成し、
- 前記流路基板の前記合流部の両外側に対応する位置に前記各スペース部を備えるとともに、前記各スペース部が前記流路基板の前記合流部の位置と一致するよう両外側から挟んで一体的に積層したことを特徴とする請求項1乃至請求項5に記載の微小液滴調製装置。

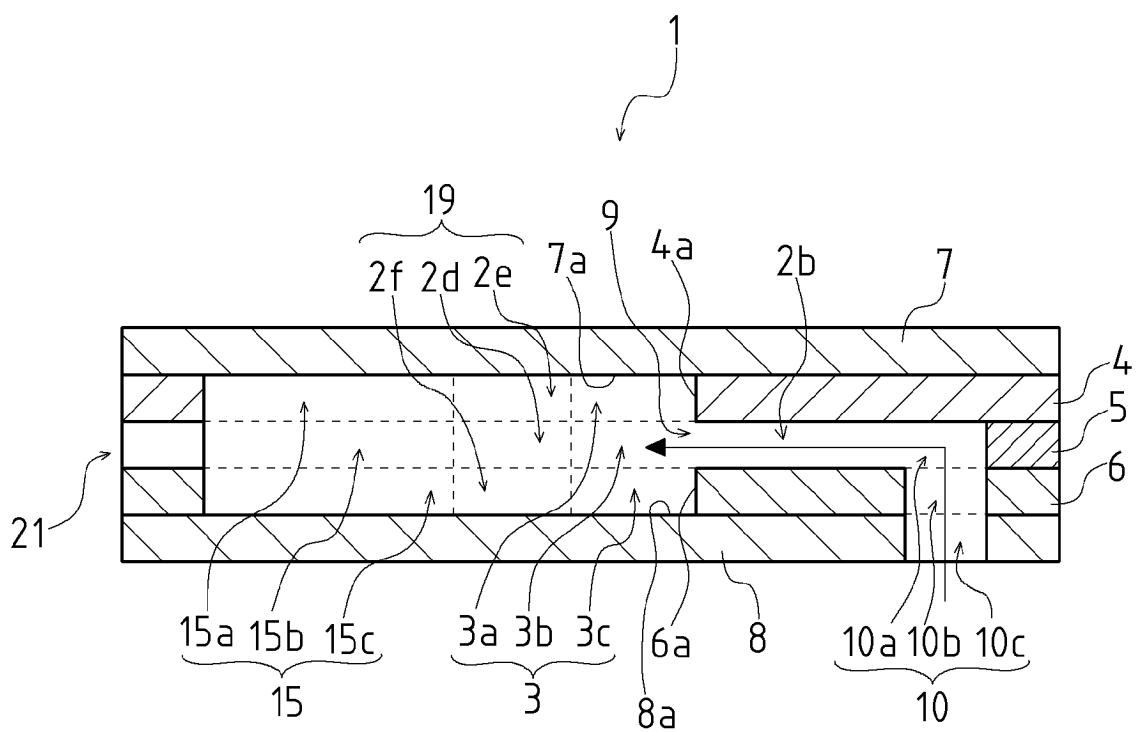
[図1]



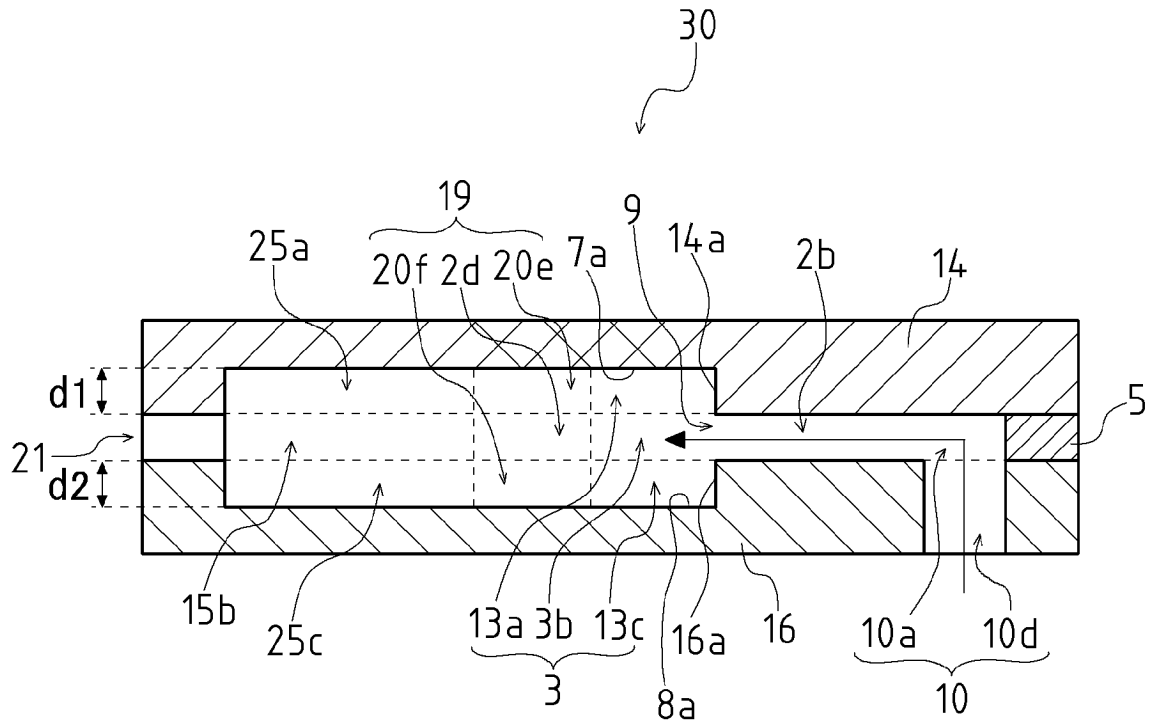
[図2]



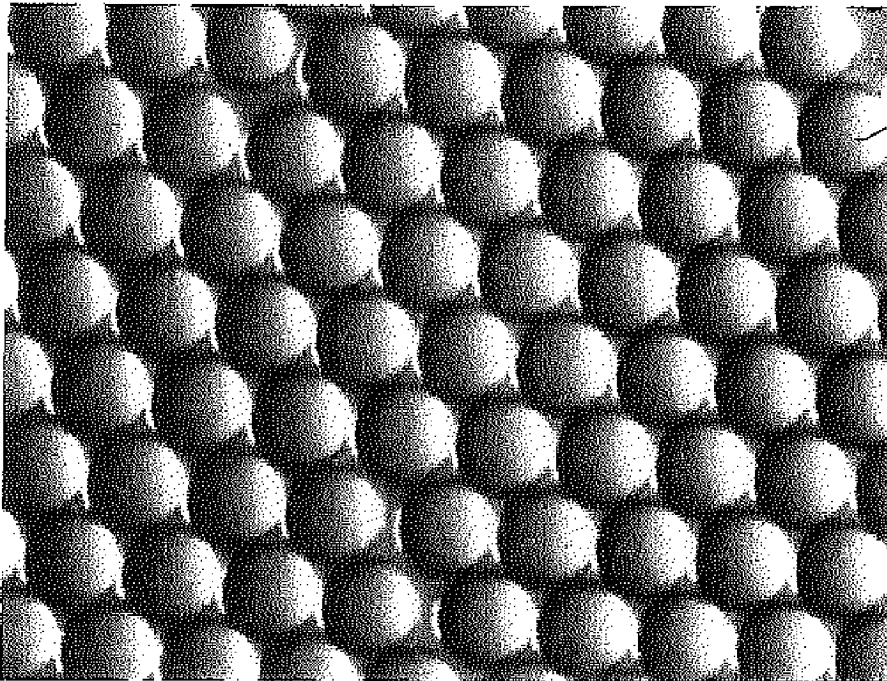
[図3]



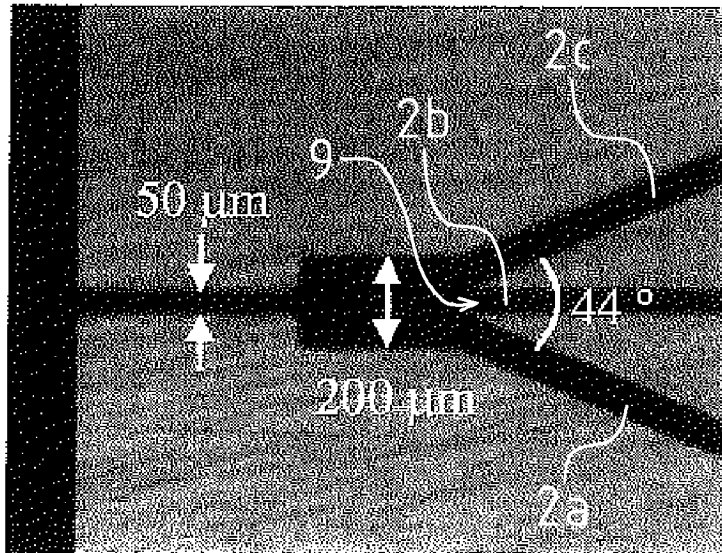
[図4]



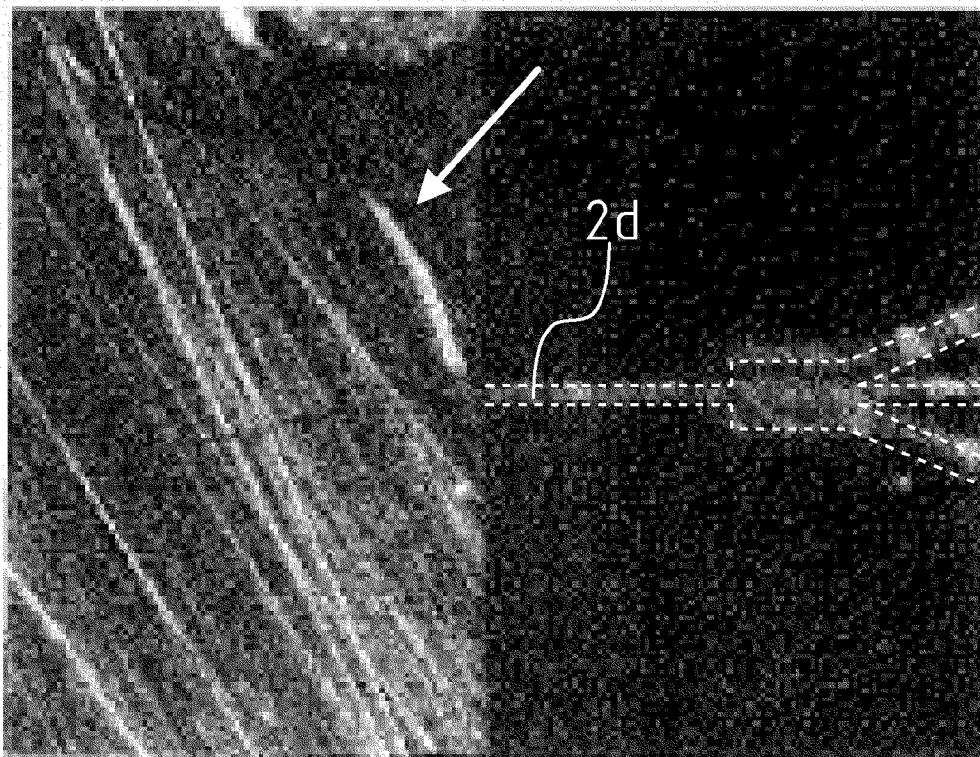
[図5]



[図6]



[図7]





## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/055816

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B01J19/00(2006.01) i, B01F3/08(2006.01) i, B01F5/00(2006.01) i, B01J13/00  
(2006.01) i, B81B1/00(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)

B01J19/00-19/32, B01F1/00-B01F5/26, B01J13/00-B01J13/22, B81B1/00-7/04,  
B81C1/00-5/00

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	1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2009	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2009

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

JSTPlus (JDreamII)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2006-43617 A (Hitachi Industries Co., Ltd.), 16 February, 2006 (16.02.06), Par. Nos. [0001], [0038], [0046]; Figs. 1, 2, 5 & US 2006/0029528 A1 & EP 1623760 A2 & DE 602005005574 T2 & TW 247626 B & CN 1730142 A	1, 2, 5 3, 4, 6-9
A	JP 2007-521944 A (Velocys, Inc.), 09 August, 2007 (09.08.07), Par. Nos. [0001], [0046]; Fig. 9 & US 2005/0133457 A1 & EP 1700075 A1 & WO 2005/060658 A1 & CA 2550079 A1 & CN 1993174 A	1-9

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  
27 May, 2009 (27.05.09)

Date of mailing of the international search report  
09 June, 2009 (09.06.09)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/055816

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2006-272268 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 12 October, 2006 (12.10.06), Par. Nos. [0064], [0070]; Fig. 8 (Family: none)	1-9
A	JP 2004-122107 A (Tosoh Corp.), 22 April, 2004 (22.04.04), Par. Nos. [0001] to [0004] & US 2003/0201022 A1 & US 2006/0231136 A1 & US 2008/0246172 A1 & EP 1358931 A2	1-9

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. B01J19/00(2006.01)i, B01F3/08(2006.01)i, B01F5/00(2006.01)i, B01J13/00(2006.01)i, B81B1/00(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 (IPC))

Int.Cl. B01J19/00-19/32, B01F1/00-B01F5/26, B01J13/00-B01J13/22, B81B1/00-7/04, B81C1/00-5/00

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	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2009年
日本国実用新案登録公報	1996-2009年
日本国登録実用新案公報	1994-2009年

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

JSTPlus(JDreamII)

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
X A	JP 2006-43617 A (株式会社 日立インダストリイズ) 2006.02.16, 【0001】、【0038】、【0046】、図1、図2、図5 & US 2006/0029528 A1 & EP 1623760 A2 & DE 602005005574 T2 & TW 247626 B & CN 1730142 A	1, 2, 5 3, 4, 6-9
A	JP 2007-521944 A (ヴェロシス インコーポレイテッド) 2007.08.09, 【0001】、【0046】、図9 & US 2005/0133457 A1 & EP 1700075 A1 & WO 2005/060658 A1 & CA 2550079 A1 & CN 1993174 A	1-9

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、一般的な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

27.05.2009

国際調査報告の発送日

09.06.2009

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)  
 郵便番号100-8915  
 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)

三崎 仁

4Q

4435

電話番号 03-3581-1101 内線 3468

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
A	JP 2006-272268 A (富士写真フイルム株式会社) 2006. 10. 12, 【0064】、【0070】、図8 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2004-122107 A (東ソー株式会社) 2004. 04. 22, 【0001】 - 【0004】 & US 2003/0201022 A1 & US 2006/0231136 A1 & US 2008/0246172 A1 & EP 1358931 A2	1-9