



(12) CERERE DE BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: a 2020 00320

(22) Data de depozit: 05/06/2020

(41) Data publicării cererii:
30/12/2021 BOPI nr. 12/2021

(71) Solicitant:
• MGM STAR CONSTRUCT S.R.L.,
STR.PÂNCOTA NR.7, BL.13, SC.1, AP.19,
SECTOR 2, BUCUREȘTI, B, RO

(72) Inventatori:
• SOBETKII ARCADIE, STR. CREMENITA
NR. 82, AP. 7, SECTOR 2, BUCUREȘTI, B,
RO;
• VIȘAN MIHAI, STR. PANCOTA NR. 7,
BL. 13, SC. 1, ET. 6, AP. 19, SECTOR 2,
BUCUREȘTI, B, RO;

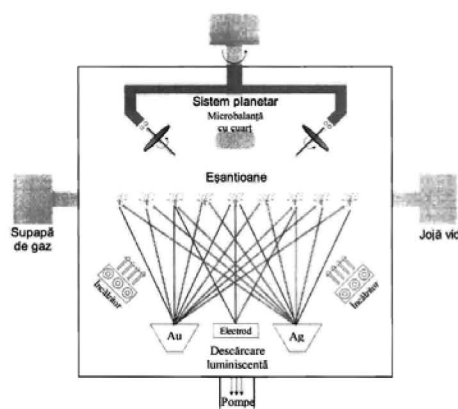
• CAPATINA VALENTINA,
STR.CREMENITA, NR.82, AP.7, SECTOR 2,
BUCUREȘTI, B, RO;
• SOBETKII ARCADII, STR.MAGNOLIEI,
NR.101, AP.2, SECTOR 2, BUCUREȘTI, B,
RO;
• IORDACHE ANA-MARIA, SAT COȘANI,
COMUNA FRÎNCEȘTI, VL, RO;
• IORDACHE ȘTEFAN-MARIAN,
SAT COȘANI, COMUNA FRÎNCEȘTI, VL,
RO;
• GRIGORESCU CRISTIANA EUGENIA
ANA, STR.BRÂNDUȘILOR, NR.6, BL. V70,
SC.4, ET.3, AP.60, BUCUREȘTI, B, RO

(54) **PROCEDEU DE PREPARARE LA SCARĂ INDUSTRIALĂ
A UNOR SUPRAFEȚE NANOSTRUCTURATE TIP Au-Ag
ȘI SUPRAFEȚELE ASTFEL OBȚINUTE PENTRU SUBSTRATE
DESTINATE ANALIZEI PRIN SPECTROSCOPIE
CU PLASMONI DE SUPRAFAȚĂ ÎNTIMP REAL**

(57) Rezumat:

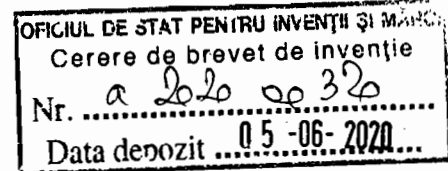
Invenția se referă la un procedeu de preparare la scară industrială a unor suprafețe nanostructurate tip Au - Ag utilizate ca substrat destinate analizei prin spectroscopie cu plasmoni de suprafață în timp real având aplicații în diagnoza medicală, chirurgie, histopatologie, monitorizarea tratamentelor și forensică. Procedeu conform invenției constă în depunerea simultană sau alternativă a unor nanoparticule de Au și Ag, în proporții corespunzătoare de 20...50%, prin evaporare cu tun de electroni din ținte elementale sau de aliaj Au - Ag, pe 10...20 substrat metalice sau alte materiale rezistente la temperatură, încălzite la 150...260°C în vid de 10^{-5} mbar, într-un interval de timp cuprins între 1...5 min. cu rata de depunere cuprinsă între 0,1...1,0 A/sec., substratetele fiind dispuse într-un sistem planetar care permite acoperirea uniformă a suprafețelor așezate la o distanță suficient de mare de sursă pentru un control precis al fluxurilor de nanoparticule și cu răcire până la temperatura camerei.

Revendicări: 1
Figuri: 1



Cu începere de la data publicării cererii de brevet, cererea asigură, în mod provizoriu, solicitantului, protecția conferită potrivit dispozițiilor art.32 din Legea nr.64/1991, cu excepția cazurilor în care cererea de brevet de invenție a fost respinsă, retrasă sau considerată ca fiind retrasă. Întinderea protecției conferite de cererea de brevet de invenție este determinată de revendicările conținute în cererea publicată în conformitate cu art.23 alin.(1) - (3).





6,

DESCRIERE

Invenția se referă la un procedeu de preparare la scara industrială a unor suprafețe nanostructurate tip Au-Ag și suprafețele astfel obținute incluzând suprafețele utile ale unor instrumente chirurgicale pentru substraturi destinate analizei prin spectroscopie cu plasmoni de suprafață în timp real cu aplicații în diagnoza medicală incluzând chirurgie, histopatologie, monitorizarea tratamentelor și forensică.

O problemă importantă în realizarea suprafețelor nanostructurate din aliaje Au-Ag pentru analize prin spectroscopie cu plasmoni de suprafață, de exemplu cu plasmoni de rezonanță (suprafețe plasmon rezonanță SPR), împrăștiere Raman amplificată de suprafață (SERS), în special pentru probe biologice nepreparate (*label free*) este obținerea aliajelor/combinărilor optime Au-Ag și asigurarea reproductibilității acestora la scara industrială prin metode puțin sau deloc poluante, cu costuri scăzute și fără funcționalizarea suprafețelor.

Se cunoaște faptul că probele biologice nepreparate au secțiunii de împrăștiere transversală foarte redusă a moleculelor biologice și produc semnale de fluorescență de intensități superioare celor de împrăștiere sau reflexie la excitații cu surse monocromatice în domeniul vizibil. Pentru astfel de analize se apelează la efectele de amplificare obținute prin utilizarea substraturilor generatoare de plasmoni de suprafață.

Printre metodele testate pentru diagnoza în timp real spectroscopia Raman, care extrage informații chimice, a fost raportată ca având o sensibilitate de 100%, o specificitate de 100% și o acuratețe generală de 93% în identificarea carcinoamelor (Horsnell JD, et al., *Lasers Med. Sci.* 2016, 31, 1143–1149), fiind, în același timp, nedistructivă și având capacitatea de discriminare a compoziției chimice până la nivel de moleculă inclusiv ADN (Camden JP et al., 2008, *J. Am. Chem. Soc.* 130, 12 616–12 617; Kneipp K, et al., 2015, *Chem. Sci.* 6, 2721; Andreou C, et al., 2015, *J. Nucl. Med.* 56, 1295–1299; Byrne HJ et al., 2015, *Analyst* 140, 2066–2073) în țesuturi, fluide corporale, etc., fiind astfel utilă în diagnosticul medical și forensică,

Cele mai utilizate până în prezent sunt suprafețele cu nanoparticule sau clusteri de Au sau Ag înrobate în oxizi, datorită plasmonilor de rezonanță ale acestor metale cu un singur electron de valență, în special pe sisteme coloidale. (Hyejin Jang et al, *Current Applied Physics* 16 (2016) 24e30 ; J. F. Sanchez-Ramirez, et al, *Journal of Nanomaterials*, Volume 2008, Article ID 620412, doi:10.1155/2008/620412). Se cunosc mai multe procedee de obținere a suprafețelor cu nanoparticule de Au sau Ag (Sharma B, et al., *Mater. Today* 15, 16–25), pentru



aplicatii in medicina prin modificarea structurii suprafetelor unor instrumente chirurgicale (WO 2011097578 A1) sau prin functionalizarea nanoparticulelor de Au cu proteine (US 20130217037 A1), fie prin depunerea la temperaturi moderate (20-200°C) de straturi de Ag pe diferite suprafete dupa depunerea unui strat de oxid (WO 2015107476 A1) prin atomic layer deposition in mai multe cicluri.

Dezavantajele metodelor mentionate mai sus includ costurile ridicate, dificultatea controlului reproductibilitatii structurilor si compozitiei suprafetelor, imposibilitatea de a asigura un numar suficient de mare de substrate incluzand instrumente chirurgicale cu proprietati reproductibile de la un lot la altul pentru a extinde procedeul la scara industriala.

Un obiectiv al inventiei este de a realiza la scara industriala suprafete nanostructurate perfect reproductibile din aliaje Au-Ag incluzand suprafetele utile ale unor instrumente chirurgicale pentru analize prin spectroscopie cu plasmoni de suprafata, in special pentru probe biologice nepreparate (*label free*)

Un al doilea obiectiv al inventiei este de a dezvolta un procedeu simplu, rapid si putin costisitor de obtinere a acestor suprafete din aliaje/combinatii optime Au-Ag asigurandu-se reproductibilitatea acestora la scara industriala prin metode putin sau de loc poluante, cu costuri scazute si fara functionalizarea suprafetelor.

Problema pe care o rezolva inventia este de a realiza, printr-un procedeu simplu, rapid, nepoluant si putin costisitor disponibil si reproductibil la scara industriala, suprafete nanostructurate incluzand suprafetele utile ale unor instrumente chirurgicale cu dimensiunile nanoparticulelor 2...5nm, cu aderetenta foarte buna la suprafata initiala, cu rezistenta la temperaturi de 150-200°C, pornind de la depunerea simultana sau alternativa a unor nanoparticule de Ag si Au, in proportii corespunzatoare de 20...50%, prin evaporare cu tun de electroni din tinte elementale sau de aliaj Au-Ag, pe 10...20 substrate metalice sau alte materiale rezistente la temperatura intr-un timp de 1...5 min cu rata de depunere 0.1...1.0 A/sec, aceste proprietati fiind reproductibile.

Procedeul de preparare la scara industriala a suprafetelor nanostructurate tip Au-Ag si suprafetele astfel obtinute pentru substrate destinate analizei prin spectroscopie cu plasmoni de suprafata in timp real cu aplicatii in diagnoza medicala, chirurgie, histopatologie, monitorizarea tratamentelor si forensica conform inventiei este caracterizat prin aceea ca sunt depuse simultan sau alternativ nanoparticule de Ag si Au, in proportii corespunzatoare de 20...50%, prin evaporare cu tun de electroni din tinte elementale sau de aliaj Au-Ag, pe 10...20 substrate metalice sau alte materiale rezistente la temperatura incalzite la 150...260° C in vid 10^{-5} mbar intr-un timp de 1...5 min cu rata de depunere 0.1...1.0 A/sec, substratele fiind dispuse



y

intr-un sistem planetar care permite acoperirea uniforma a suprafetelor asezate la o distanta suficient de mare de sursa pentru un control precis al fluxurilor de nanoparticule si racirea pana la temperatura camerei.

Invenția prezintă următoarele avantaje:

- procedeul de obținere este simplu și oferă avantajul că produce la scara industrială suprafețe nanostructurate tip Au-Ag perfect reproductibile pentru substraturi destinate analizei prin spectroscopie cu plasmoni de suprafață
- permite obținerea unor filme aderente nanostructurate tip Au-Ag cu proporții controlate și reproductibile
- permite acoperirea integrală a tuturor suprafețelor cu filme uniforme și grosimi controlate
- necesită costuri reduse;
- nu este toxic ;
- are randament ridicat;
- conduce la aplicații de mare interes care pot contribui în mod semnificativ la stadiul actual al analizelor biomoleculare rapide label free

Se da în continuare un exemplu de aplicare a invenției în legătură și cu figura 1, care prezintă: Fig.1 Schema de principiu a procedurii de obținere la scara industrială a suprafețelor nanostructurate tip Au-Ag.

Exemplul 1

Pentru aplicarea procedurii conform invenției în cele două creuzete se introduc 20...50% Au, respectiv Ag sau aliaj Au-Ag în proporțiile corespunzătoare, se așază 10...20 substraturi în suportii atașați sistemului planetar care permite acoperirea uniformă a suprafețelor așezate la o distanță suficient de mare de sursă pentru un control precis al fluxurilor de nanoparticule, se aduce presiunea în încăntă la un nivel de 10^{-5} mbar și încălzitoarele la temperaturi de 150...200°C, se acționează tunul cu electroni pentru evaporarea surselor din cele două creuzete într-un timp de 1...5 min cu rată de depunere 0.1...1.0 A/sec. Grosimea se măsoară cu o microbalanță cu cuarț. După atingerea grosimii dorite sistemul este adus la răcire până la temperatura camerei.



REVENDICĂRI

1. Procedeu de preparare la scara industrială a unor suprafețe nanostructurate tip Au-Ag și suprafețele astfel obținute pentru substraturi destinate analizei prin spectroscopie cu plasmoni de suprafață în timp real cu aplicații în diagnoză medicală, chirurgie, histopatologie, monitorizarea tratamentelor și forensică, caracterizat prin aceea că sunt depuse simultan sau alternativ nanoparticule de Ag și Au, în proporții corespunzătoare de 20...50%, prin evaporare cu tun de electroni din ținte elementale sau de aliaj Au-Ag, pe 10...20 substraturi metalice sau alte materiale rezistente la temperatura încălzite la 150...260° C în vid 10^{-5} mbar într-un timp de 1...5 min cu rata de depunere 0.1...1.0 A/sec, substraturile fiind dispuse într-un sistem planetar care permite acoperirea uniformă a suprafețelor așezate la o distanță suficient de mare de sursă pentru un control precis al fluxurilor de nanoparticule și răcirea până la temperatura camerei.



