



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本 (11)證書號數：TW I465709 B

(45)公告日：中華民國 103 (2014) 年 12 月 21 日

(21)申請案號：102104357

(22)申請日：中華民國 102 (2013) 年 02 月 05 日

(51)Int. Cl. : G01N21/64 (2006.01)

(71)申請人：國立交通大學(中華民國) NATIONAL CHIAO TUNG UNIVERSITY (TW)
新竹市大學路 1001 號

(72)發明人：徐樹剛 HSU, SHU KANG (TW)；張淑閔 CHANG, SUE MIN (TW)

(74)代理人：蔡朝安

(56)參考文獻：

TW 200713631A

TW 201140032A

TW 201238095A

CN 1800914A

審查人員：蔡宏鑫

申請專利範圍項數：16 項 圖式數：6 共 15 頁

(54)名稱

螢光增強裝置

APPARATUS FOR FLUORESCENCE ENHANCEMENT

(57)摘要

一種螢光增強裝置包含光源、螢光材料層、第一光子晶體層及第二光子晶體層。光源可發射激發光，激發螢光材料層中的螢光材料進而發射螢光。第一光子晶體層與第二光子晶體層係設置於螢光材料層之激發光入射方向之下游。第一光子晶體層之第一光子晶體之光能隙與激發光之波長重疊，藉以反射激發光至螢光材料層。第二光子晶體層之第二光子晶體光能隙與螢光材料之螢光波長重疊，藉以反射螢光材料所發射之螢光。本發明之優勢包括可重複使用光子晶體進行感測並可增強螢光強度。

An apparatus for fluorescence enhancement includes a light source, a fluorescent material layer and first and second photonic crystal layers. The light source emits excitation light capable of exciting a fluorescent material in the first fluorescent material layer to emit fluorescence. The first and second photonic crystal layers are configured at the downstream of the fluorescent material layer in the direction of the excitation light. The optical band gap of the first photonic crystal in the first photonic crystal layer overlaps with the wavelength of the excitation light to reflect the excitation light to the fluorescent material layer. The optical band gap of the second photonic crystal in the second photonic crystal layer overlaps with the wavelength of the fluorescence to reflect the fluorescence emitted by the fluorescent material. The present invention achieves advantages including repetitive usage of photonic crystals for detection and improved fluorescent intensity.

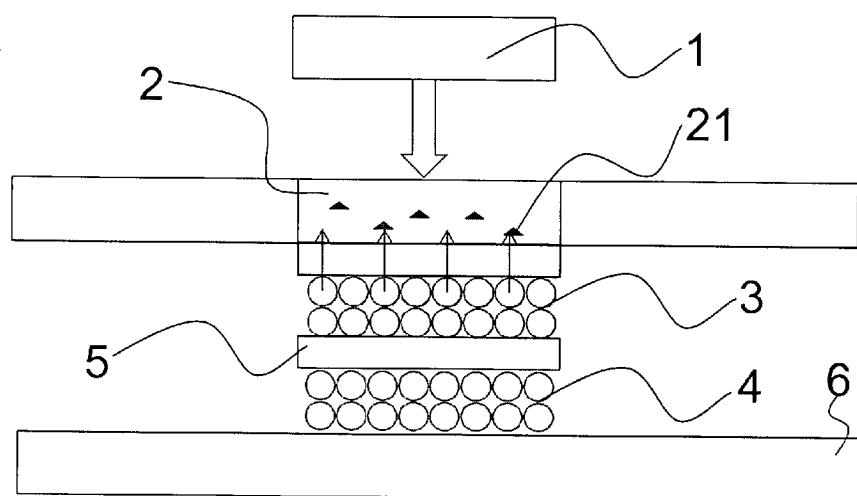


圖1

- 1 · · · 光源
- 2 · · · 融光材料層
- 21 · · · 融光材料
- 3 · · · 第一光子晶體層
- 4 · · · 第二光子晶體層
- 5 · · · 透明基材
- 6 · · · 載體

發明摘要

※ 申請案號： 102104357

※ 申請日： 102. 2. 05

※IPC 分類： G01N 21/64 (2006.01)

【發明名稱】(中文/英文)

螢光增強裝置/ APPARATUS FOR FLUORESCENCE ENHANCEMENT

【中文】

一種螢光增強裝置包含光源、螢光材料層、第一光子晶體層及第二光子晶體層。光源可發射激發光，激發螢光材料層中的螢光材料進而發射螢光。

第一光子晶體層與第二光子晶體層係設置於螢光材料層之激發光入射方向之下游。第一光子晶體層之第一光子晶體之光能隙與激發光之波長重疊，藉以反射激發光至螢光材料層。第二光子晶體層之第二光子晶體光能隙與螢光材料之螢光波長重疊，藉以反射螢光材料所發射之螢光。本發明之優勢包括可重複使用光子晶體進行感測並可增強螢光強度。

【英文】

An apparatus for fluorescence enhancement includes a light source, a fluorescent material layer and first and second photonic crystal layers. The light source emits excitation light capable of exciting a fluorescent material in the first fluorescent material layer to emit fluorescence. The first and second photonic crystal layers are configured at the downstream of the fluorescent material layer in the direction of the excitation light. The optical band gap of the first photonic crystal in the first photonic crystal layer overlaps with the wavelength of the excitation light to reflect the excitation light to the fluorescent material layer. The optical band gap of the second photonic crystal in the second photonic crystal layer overlaps with the

wavelength of the fluorescence to reflect the fluorescence emitted by the fluorescent material. The present invention achieves advantages including repetitive usage of photonic crystals for detection and improved fluorescent intensity.

【代表圖】

【本案指定代表圖】：第(1)圖。

【本代表圖之符號簡單說明】：

- | | |
|----|---------|
| 1 | 光源 |
| 2 | 螢光材料層 |
| 21 | 螢光材料 |
| 3 | 第一光子晶體層 |
| 4 | 第二光子晶體層 |
| 5 | 透明基材 |
| 6 | 載體 |

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：

無

wavelength of the fluorescence to reflect the fluorescence emitted by the fluorescent material. The present invention achieves advantages including repetitive usage of photonic crystals for detection and improved fluorescent intensity.

【代表圖】

【本案指定代表圖】：第(1)圖。

【本代表圖之符號簡單說明】：

- | | |
|----|---------|
| 1 | 光源 |
| 2 | 螢光材料層 |
| 21 | 螢光材料 |
| 3 | 第一光子晶體層 |
| 4 | 第二光子晶體層 |
| 5 | 透明基材 |
| 6 | 載體 |

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：

無

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

【發明名稱】(中文/英文)

螢光增強裝置/ APPARATUS FOR FLUORESCENCE ENHANCEMENT

【技術領域】

【001】 本發明係關於螢光增強裝置，特別是關於利用光子晶體之螢光增強裝置。

【先前技術】

【002】 螢光檢測技術為環境、生醫、食品...等等常見之檢測應用，然螢光檢測常遭遇螢光強度低而影響螢光檢測效果之困擾。光子晶體具有特殊光能隙，可應用於提高激發光強度、螢光萃取效率，為近年來提高螢光檢測靈敏度方法之一。但目前設計之光子晶體螢光檢測器僅能單次使用，且反應時間長，因此並無法進行多次或連續監測。

【003】 目前已知的技術或文獻係將螢光材料直接與光子晶體接觸，藉由該光子晶體之光能隙與螢光材料之螢光波長重疊(部分同時含有與激發光波長重疊之光能隙)，達到螢光強度增強的效果。Cui 等人(Anal. Methods, 2010, 2, 448-450.)利用可檢測汞離子之螢光材料與光子晶體混合，該光子晶體之光能隙與螢光波長重疊，達到提高螢光檢測靈敏度。Li 等人(Journal of Colloid and Interface Science 356, 2011, 63-68.)利用兩層不同光能隙之光子晶體，其中一層光能隙與激發光重疊，另一層光能隙與螢光重疊，當螢光材料滲入該光子晶體複合層中，達到提高螢光強度效果。然而上述先前技術的光子晶體感測器皆不具重複使用功能。螢光材料直接與光子晶體接觸造成待測物在光子晶體間質傳的問題，限制檢測與清洗效率，並在反覆使用中破壞光子晶體結構與螢光材料特性，致使光子晶體感

測器無法多次重複使用，亦無連續監測應用能力。另外螢光材料與光子晶體混合，部份發光會被光子晶體反射至光學檢測器相反方向，而降低可被檢測的螢光強度。

【004】 綜合上述，開發一種可重複使用且可增強螢光強度的光子晶體感測器是目前需努力的目標。

【發明內容】

【005】 本發明的目的之一係開發一種螢光增強裝置，其可重複使用光子晶體進行感測並可增強螢光強度。

【006】 依據本發明之一實施例，一種螢光增強裝置包含光源、螢光材料層、第一光子晶體層及第二光子晶體層。光源可發射激發光，激發螢光材料層中的螢光材料進而發射螢光。第一光子晶體層與第二光子晶體層係設置於螢光材料層之激發光入射方向之下游。第一光子晶體層之第一光子晶體之光能隙與激發光之波長重疊，藉以使得第一光子晶體層反射激發光至螢光材料層。第二光子晶體層之第二光子晶體光能隙與螢光材料之螢光波長重疊，藉以反射螢光材料所發射之螢光。

【007】 以下藉由具體實施例配合所附的圖式詳加說明，當更容易瞭解本發明之目的、技術內容、特點及其所達成之功效。

【圖式簡單說明】

【008】

圖 1 及圖 2 為示意圖顯示本發明之一實施例之一種螢光增強裝置。

圖 3 為光譜吸收圖顯示第一及第二光子晶體之光能隙及激發光與螢光材料的波長範圍。

圖 4 為實驗數據顯示本發明之一實施例以光子晶體反射激發光與螢光所得之螢光增強結果。

圖 5 為實驗數據顯示本發明之一實施例之水中銅離子濃度對應螢光強度。

圖 6 為實驗數據顯示本發明之一實施例之水中銅離子濃度與螢光淬滅量關係。

【實施方式】

【009】 請參照圖 1 及圖 2，其為示意圖顯示本發明之一實施例之一種螢光增強裝置，包含光源 1、螢光材料層 2、第一光子晶體層 3 及第二光子晶體層 4。光源 1 可發射激發光，激發螢光材料層 2 中的螢光材料 21 進而發射螢光(圖 2 之虛線部分)。

【0010】 第一光子晶體層 3 與第二光子晶體層 4 係設置於螢光材料層 2 之激發光入射方向之下游。第一光子晶體層 3 之第一光子晶體之光能隙與激發光之波長重疊，藉以使得第一光子晶體層 3 反射激發光至螢光材料層 2，如圖 1 所示，而使螢光材料層 2 之螢光材料 21 再度被激發而發射螢光。

【0011】 第二光子晶體層 4 之第二光子晶體光能隙與螢光材料 21 之螢光波長重疊，藉以反射螢光材料 21 所發射之螢光，如圖 2 所示，藉以增加螢光強度。

【0012】 此處所指的光子晶體是週期性的介電質分佈結構，本發明之第一光子晶體及第二光子晶體可為一維、二維或三維排列。其中在一較佳實施例中，第一光子晶體及第二光子晶體為一維排列，其作用為全反射

膜，藉以反射激發光或螢光。其中一維排列光子晶體可包括布拉格反射層（distributed Bragg reflector, DBR）。

【0013】 在一實施例中，第一及第二光子晶體係由一微米球自組裝所形成，其中微米球之組成為一有機高分子、一無機成份或其組合。此處的有機高分子可包含但不限於聚苯乙烯系列、聚甲基丙烯酸甲酯系列、聚馬來酸系列、聚乳酸系列、聚胺基酸系列的高分子或其組合。無機成份可包含但不限於矽、鈦、鋯、金、銀、鐵、鋁、銅、鎳金屬、其金屬氧化物或其組合。此外微米球組成可由有機-無機成分所組成，其可包含但不限於碳-矽、碳-鈦、碳-鋯、碳-鋁系列之材質及其組合。

【0014】 如圖 1 所示，第一光子晶體層 3 係設置於第二光子晶體層 4 之激發光入射方向之上游。然而第一光子晶體層 3 與第二光子晶體層 4 之相對位置可作調整，在本發明之另一實施例中，第二光子晶體層 4 係設置於第一光子晶體層 3 之激發光入射方向之上游。

【0015】 圖 1 所示之光源 1 係設置於第一光子晶體層 3 與第二光子晶體層 4 之上方；然而，光源 1 亦可設置於第一光子晶體層 3 與第二光子晶體層 4 之下方或是其他相對位置，只要光源 1 可射入螢光材料層 2 及第一光子晶體層 3 即可。

【0016】 此外，如圖 1 所示，本發明之螢光增強裝置包含設置於第二反射層及第一反射層之間的一透明基材 5，由此可知第一光子晶體層 3 與第二光子晶體層 4 為可分離的。此外，第二光子晶體層 4 可設置於一載體 6 之上。

【0017】 在一實施例中，可由兩塊蓋玻片建構一小區域即可界定螢

光材料層 2，使其可置放螢光材料 21，然而其他界定螢光材料層 2 之方式亦為可行，只要達成承載螢光材料及透光即可。

【0018】 本項技術領域人士可知螢光材料的多樣性，其可約略分類為有機螢光分子、無機螢光分子，在此未詳列，其中有機螢光分子包括但不限於螢光蛋白(fluorescent proteins)等。

【0019】 其中在一實施例中，螢光材料包含一量子點，舉例但不限於 CdS、CdSe、CdTe、CdPo、ZnS、ZnSe、ZnTe、ZnPo、MgS、MgSe、MgTe、PbSe、PbS、PbTe、HgS、HgSe 或 HgTe。

【0020】 第一光子晶體與第二光子晶體之光能隙係藉由微米球之粒徑與有效折射率所調整。

$$m\lambda_{\text{peak}} = 2 d_{111} (n_{\text{eff}}^2 - \sin^2 \theta)^{1/2}$$

【0021】 請參照上式光能隙公式(T. Endo et al. / Sensors and Actuators B 125 (2007) 589–595)，其由布拉格公式所推導，其中 m 指的是衍射等級； λ_{peak} 為衍射峰波長； d_{111} 為(111)平面的間格距離； θ 為入射光與折射面法向量之間的夾角； n_{eff} 為晶格的平均折射率。其中沿著(111)相緊密填充的面心立方晶體(FCC)結構中， $d_{111} = 0.816D$ ，其中 D 指的是球半徑。

【0022】 舉例而言，本發明之螢光增強裝置可用於檢測，應用領域包含但不限於環境、生醫、食品。在一實施例中，可將待測物(未顯示)放置於螢光材料層，以便與螢光材料共反應，進而檢測待測物之濃度。

【0023】 以下通過具體實施例配合附圖詳加說明，可更容易瞭解本發明的目的、技術內容、特點及所達成的功效，並據以實

施，但不能以此限定本發明的保護範圍。

光子晶體之製備

【0024】 請參照圖 3，其為光譜吸收圖顯示第一及第二光子晶體之光能隙及激發光與螢光材料相對應的反射、吸發光波長及強度。第一光子晶體以 160nm 苯乙烯微米球自組裝之蛋白石，其間隙以二氧化矽(silica)填滿，以下簡稱 PC160nm，其用以反射激發光，其中激發光為 LED 395 nm。本實施例以重力沉降自組裝法製備三維光子晶體結構，本法所製得之蛋白石(光子晶體)厚度可大於 100 微米。第二光子晶體以 240nm 苯乙烯微米球自組裝之蛋白石，其間隙以二氧化矽(silica)填滿，以下簡稱 PC240nm 其用以反射螢光，其中螢光物質為 CdS/ZnS 量子點，螢光波峰為 554 nm。

螢光檢測

【0025】 以化學法合成之 CdS/ZnS 核殼量子點(合成時以巯基乙酸(mercaptoacetic acid)為穩定劑)，作為水中銅離子濃度檢測之螢光感測材料，並以 Ocean Optics LED 395nm 為激發光源，進行水中銅離子螢光檢測，圖 3 為 LED 395nm 激發光與其所激發 CdS/ZnS 核殼量子點所得螢光光譜圖，

【0026】 圖 4 為 CdS/ZnS 核殼量子點以光子晶體反射激發光與螢光所得之螢光增強結果，其中同時加入第一光子晶體 PC160 及第二光子晶體 PC240 的組別，相較對照組、僅加入 PC160 及 PC240 的組別，明顯增加螢光增強因子效率。

【0027】 圖 5 為本發明之雙反射光子晶體感測器搭配 CdS/ZnS 核殼量子點偵測水中銅離子整體結果濃度，圖 6 為水中銅離子濃度與螢光淬滅

量關係，其中螢光淬滅指的是激發態的螢光分子通過各種外轉換過程失去能量使螢光強度降低的現象。測試結果顯示，本發明可將螢光強度提高23.7倍，且螢光強度隨水中銅離子濃度升高降低，其螢光淬滅量可作為水中銅離子濃度檢測依據。

【0028】 綜合上述，本發明將分別與激發光、螢光波長重疊之複數光子晶體層組合，可建構可置放螢光材料或螢光材料與待測物混合之樣品的小型容器。如此，除可達到增強螢光檢測之螢光強度外，並可使檢測樣品與螢光物質不與光子晶體結構接觸而造成其污染，使得使用光子晶體的檢測器可重複使用多次，並具連續增強螢光效能之檢測能力，藉以擴大光子晶體實務應用之範圍。

【0029】 以上所述之實施例僅係為說明本發明之技術思想及特點，其目的在使熟習此項技藝之人士能夠瞭解本發明之內容並據以實施，當不能以之限定本發明之專利範圍，即大凡依本發明所揭示之精神所作之均等變化或修飾，仍應涵蓋在本發明之專利範圍內。

【符號說明】

- | | |
|----|---------|
| 1 | 光源 |
| 2 | 螢光材料層 |
| 21 | 螢光材料 |
| 3 | 第一光子晶體層 |
| 4 | 第二光子晶體層 |
| 5 | 透明基材 |
| 6 | 載體 |

I465709

【生物材料寄存】

國內寄存資訊【請依寄存機構、日期、號碼順序註記】

無

國外寄存資訊【請依寄存國家、機構、日期、號碼順序註記】

無

【序列表】(請換頁單獨記載)

無

申請專利範圍

1. 一種螢光增強裝置，其用於螢光檢測並包含：
 - 一光源，用以發射一激發光；
 - 一螢光材料層，其包含一螢光材料，其中該激發光用以激發該螢光材料發射一螢光；
 - 一第一光子晶體層，用以反射該激發光至該螢光材料層，其包含一第一光子晶體，該第一光子晶體之光能隙與該激發光之波長重疊；以及
 - 一第二光子晶體層，用以反射該螢光材料之該螢光，其包含一第二光子晶體，該第二光子晶體之光能隙與該螢光材料之螢光波長重疊，其中該第一光子晶體層與該第二光子晶體層係設置於該螢光材料層之該激發光入射方向之下游。
2. 如請求項1之螢光增強裝置，其中該第一光子晶體及該第二光子晶體為一維、二維或三維排列。
3. 如請求項1之螢光增強裝置，其中該第一光子晶體及該第二光子晶體為一維排列。
4. 如請求項1之螢光增強裝置，其中該第一光子晶體層係設置於該第二光子晶體層之該激發光入射方向之上游。
5. 如請求項1之螢光增強裝置，其中該第二光子晶體層係設置於該第一光子晶體層之該激發光入射方向之上游。
6. 如請求項1之螢光增強裝置，其中該第一光子晶體層與該第二光子晶體層為可分離設計。

7. 如請求項 1 之螢光增強裝置，更包含：
 - 一透明基材，其設置於該第二光子晶體層及該第一光子晶體層之間。
8. 如請求項 1 之螢光增強裝置，該第一光子晶體及該第二光子晶體係由多個微米球自組裝所形成。
9. 如請求項 8 之螢光增強裝置，其中該些微米球之組成為一有機高分子、一無機成份或其組合。
10. 如請求項 9 之螢光增強裝置，其中該有機高分子係選自於聚苯乙烯系列、聚甲基丙烯酸甲酯系列、聚馬來酸系列、聚乳酸系列、聚胺基酸系列高分子及上述組合。
11. 如請求項 9 之螢光增強裝置，其中該無機成份係選自矽、鈦、鋯、金、銀、鐵、鋁、銅、鎳金屬、其金屬氧化物及上述組合。
12. 如請求項 9 之螢光增強裝置，其中該些微米球之組成係選自碳-矽、碳-鈦、碳-鋯、碳-鋁系列之材質及上述組合。
13. 如請求項 8 之螢光增強裝置，其中該第一光子晶體與該第二光子晶體之光能隙係藉由該些微米球之粒徑所調整。
14. 如請求項 1 之螢光增強裝置，其中該螢光材料包含一量子點。
15. 如請求項 14 之螢光增強裝置，其中該量子點係選自以下所組成的群組：CdS、CdSe、CdTe、CdPo、ZnS、ZnSe、ZnTe、ZnPo、MgS、MgSe、MgTe、PbSe、PbS、PbTe、HgS、HgSe 及 HgTe。
16. 如請求項 1 之螢光增強裝置，用以檢測一待測物，其中該待測物係位於該螢光材料層。

圖 式

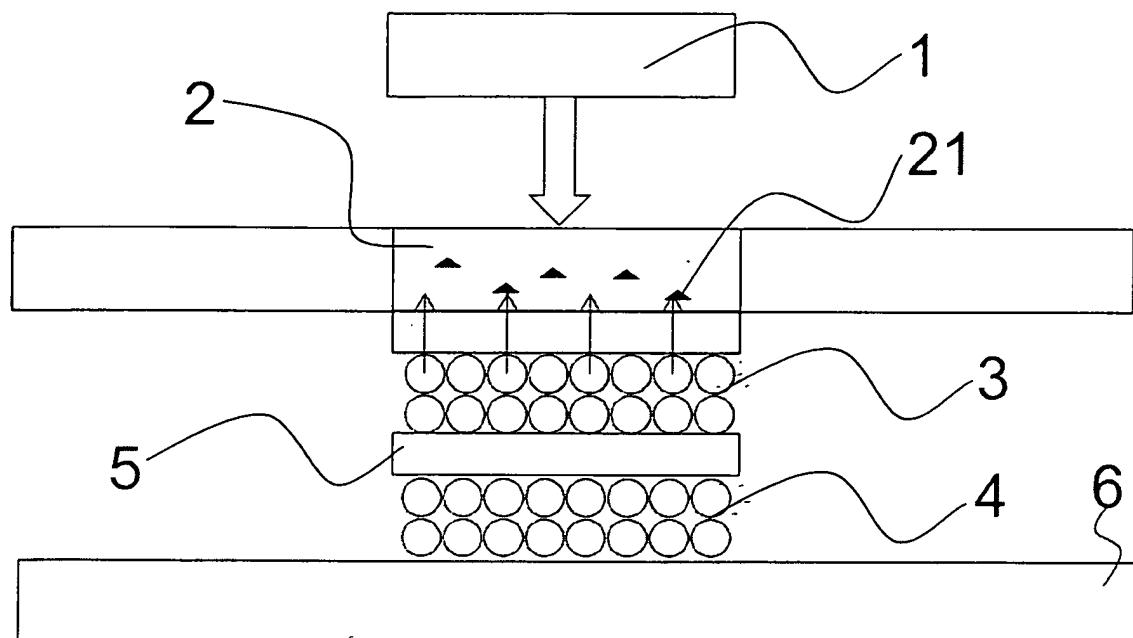


圖 1

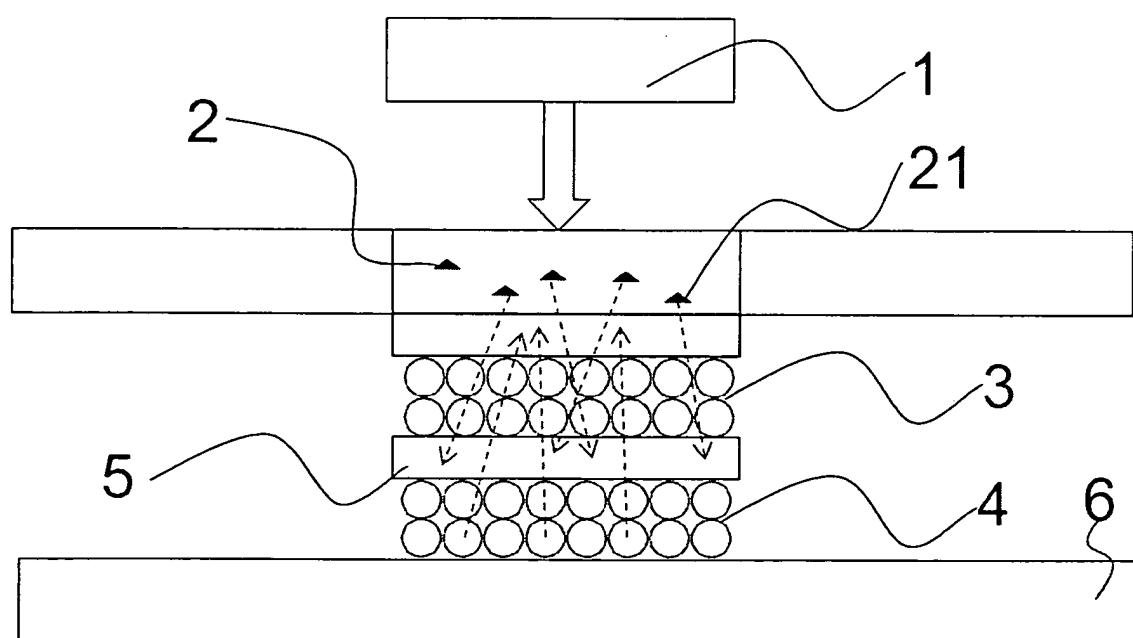


圖 2

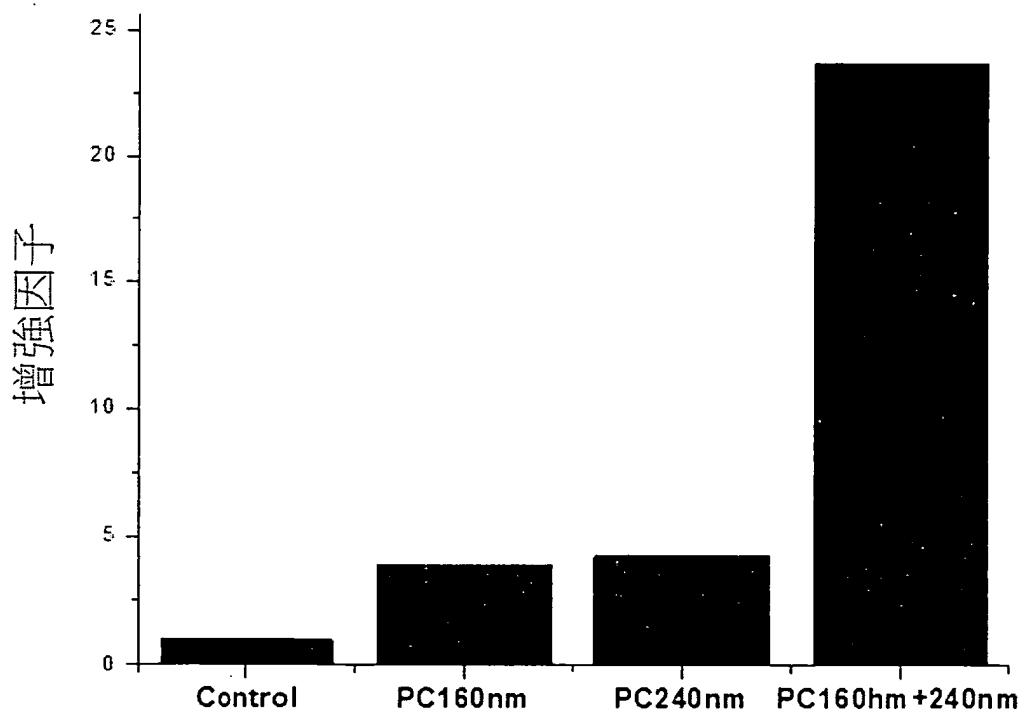
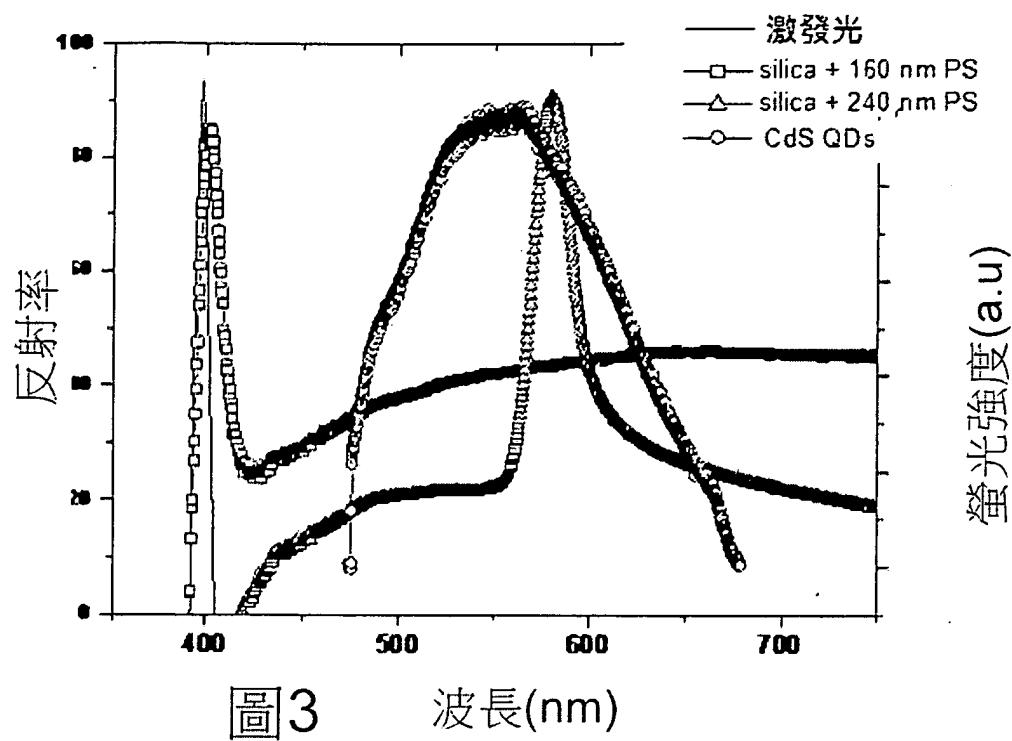


圖4

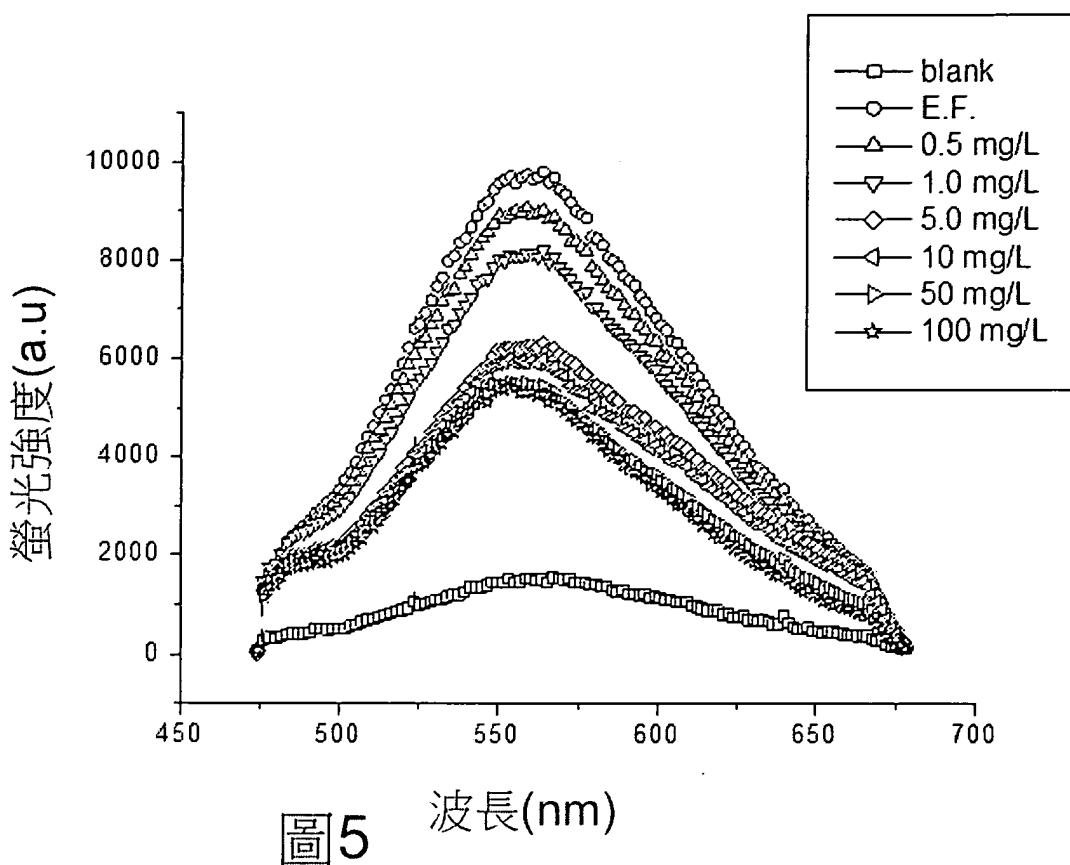


圖5

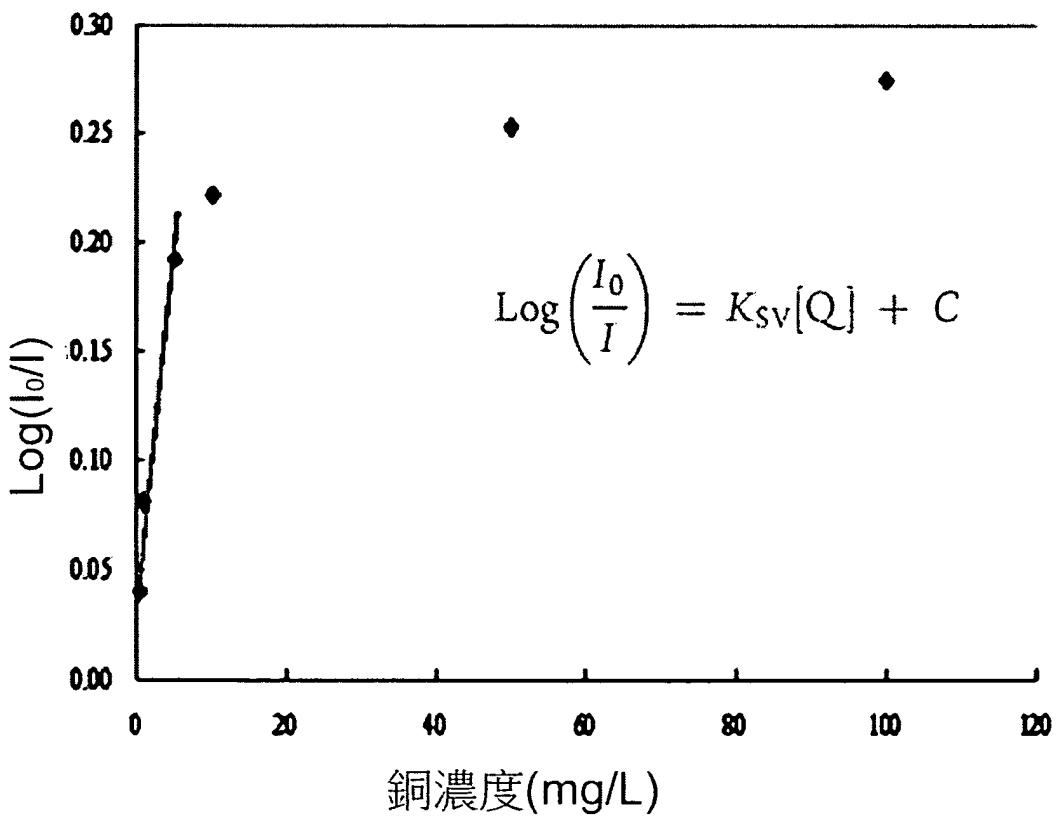


圖6