新型罗丹明 B 类荧光探针的合成及其对 Fe^{3+} 识别研究

孟文斐 杨美盼 成 昭 李少妮 杨秉勤*

(西北大学化学与材料科学学院 合成与天然功能分子化学教育部重点实验室 西安 710069)

摘要 以罗丹明 B 和间氨基吡啶缩合反应得到新型罗丹明 B 衍生物 **L1**, 并用 ^1H NMR, IR, HRMS-ESI 及 X 射线对其结构进行了确证. 通过荧光光谱法研究了目标物 **L1** 在水溶液中与金属离子的识别特性. 结果表明目标物 **L1** 作为荧光探针可选择性的比色识别 Fe^{3+} , 并且受常见离子的干扰较小. 探针 **L1** 的荧光强度与 Fe^{3+} 浓度($1 \times 10^{-6} \sim 9 \times 10^{-6}$ mol/L)呈较好的线性关系.

关键词 荧光探针; 罗丹明; 铁离子; 识别; 荧光响应

Synthesis of Novel Rhodamine B Fluorescent Probe and Recognition Study to Fe^{3+}

Meng, Wenfei Yang, Meipan Cheng, Zhao Li, Shaoni Yang, Bingqin*

(Key Laboratory of Synthetic and Natural Functional Molecule Chemistry of Ministry of Education,
Department of Chemistry, Northwest University, Xi'an 710069)

Abstract A novel rhodamine B derivative **L1** was synthesized facilely by the condensation reaction of rhodamine B hydrazide and 3-aminopyridine, and its structure was characterized by ^1H NMR, IR, HRMS-ESI and X-ray techniques. The recognition properties of the target compound **L1** with metal ions had been investigated in water solution by the fluorescence spectrophotometry. The results showed that the probe **L1** exhibited the selective colorimetric recognition to Fe^{3+} than other metal ions. When the concentration of Fe^{3+} was in the range of $1 \times 10^{-6} \sim 9 \times 10^{-6}$ mol/L, there was a good linearity between the fluorescence intensity of the probe **L1** and the concentration of Fe^{3+} .

Keywords fluorescent probe; rhodamine; iron ion; recognition; fluorescence response

铁是有机体各项生理活动不可或缺的元素, 参与血液中氧的转运, 质子转移、DNA 和 RNA 的合成^[1~4], 是各种酶和血红蛋白的重要组成部分. 一旦生物体内铁元素缺乏, 就会发生各种各样生理系统紊乱, 引起疾病^[5~9]. 而过量的铁也存在潜在的危害, 研究表明体内铁贮存过多与多种疾病如心脏和肝脏疾病、糖尿病以及某些肿瘤有关. 目前, 分光光度法^[10,11]、原子吸收光谱法^[12]、伏安法^[13]、原子发射光谱法和荧光分析法已用来检测铁离子. 荧光分析法由于具有选择性好、灵敏度高、成本低、简便快捷等特点, 因而得到了快速发展. 是目前最常用的一种方法. 尽管许多文献报道了铁离子荧光探针, 由于三价铁离子是 $3d^5$ 结构的顺磁性离子, 对荧光具有极强的猝灭性, 因此大多数报道的三价铁离子荧光探针都是荧光猝灭型的. 在探针识别客体时荧光猝灭

不仅不利于高通量信号输出, 而且其它猝灭过程也易引起干扰. 所以开发高灵敏、高选择性的荧光增强型三价铁离子荧光探针具有重要意义. 较新报道的荧光探针分子在一定程度上克服了三价铁离子对荧光的猝灭, 从而使活体细胞内的铁离子探测成为可能^[14~17].

罗丹明类荧光染料由于具有摩尔消光系数高、光稳定性好、荧光量子产率高、相对较长的激发波长(>500 nm)和发射波长^[18~20]等优异的光物理和光化学性能, 现已成为制备荧光探针的一种理想材料之一. 近年来, 以罗丹明为母体合成的荧光探针多有报道^[21~24]. 该类探针对于金属离子的识别, 主要是基于罗丹明类化合物螺酰胺环的“off-on”机理, 即在金属离子的诱导下, 探针分子氧杂蒽环螺连的内酰胺环结构被打开, 并伴随着强烈的荧光. 基于上述思路, 本文设计合成了新型罗丹明类

* E-mail: yangbq@nwnu.edu.cn

Received July 24, 2013; revised August 29, 2013; published online October 10, 2013.

Project supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 21172178).

国家自然科学基金(No. 21172178)资助项目.

荧光探针化合物 **L1**. 研究表明, 探针化合物 **L1** 不仅能准确的识别 Fe^{3+} , 而且受常见金属阳离子的干扰较小. 为避免活体细胞的损伤, 降低生物体自身荧光背景, 进一步改善 Fe^{3+} 的细胞检测提供了可能. 目标化合物 **L1** 的合成路线如 Scheme 1 所示.

1 结果与讨论

1.1 分子的设计与合成

罗丹明和荧光素等氧杂蒽类荧光染料内酯环独特的开闭环结构是一种理想的荧光开关模型, 是设计荧光增强型分子探针理想的选择. 这类探针传统的合成方法反应条件苛刻且生成物产率较低^[25]. 为了提高产率, 通常要增大罗丹明的用量, 但排放的废弃物对环境会造成严重污染. 有文献报道罗丹明探针新的合成方法^[26]. 该方法具有反应时间较短, 产率有较大提高, 后处理简单等诸多优点. 本文采用类似合成方法, 优化反应条件, 通过间氨基吡啶和罗丹明 **B** 反应得到目标探针化合物 **L1**.

1.2 缩合反应中反应物配比的影响

为了优化反应条件, 在其它反应条件不变的情况下, 考察了 3-氨基吡啶与罗丹明 **B** 盐酸盐的物质的量比对最终反应产率的影响. 由表 1 可以看出, 当 3-氨基吡啶的用量稍大于计量比, 这样有利于反应产率升高. 而当反应物比率增大到 3 : 1 时, 反应产率反而有所下降. 通过实验, 确定了最佳的反应物质的量比为 2 : 1, 此时反应产率最高.

表 1 反应物的物质的量比对产率的影响

Table 1 Effect of molar ratio of raw materials on the yield

反应物的物质的量比	1.0 : 1	1.5 : 1	2.0 : 1	2.5 : 1	3.0 : 1
产率/%	46.2	56.6	65.6	63.4	57.4

1.3 化合物 **L1** 的光谱性能研究

1.3.1 荧光探针 **L1** 对金属离子的选择性识别.

为了确定化合物 **L1** 对金属离子的识别性能, 选择碱金属(Na^+ , K^+)、碱土金属(Mg^{2+} , Ca^{2+})和过渡金属(Zn^{2+} , Cd^{2+} , Co^{2+} , Ni^{2+} , Cu^{2+} , Mn^{2+} , Ag^+ , Hg^{2+} , Cr^{3+} , Fe^{3+})及 Pb^{2+} 为识别对象, 如图 1(a)所示. 实验发现, 未加 Fe^{3+} 之前, 化合物 **L1** 本身荧光强度很弱. 此时探针主要以螺环的形式存在, 无色、无吸收. 而 Fe^{3+} 加入后在 588 nm 处荧光发射明显增强, 溶液的颜色也由无色变为桃红色. 这是由于 Fe^{3+} 诱导电子发生转移导致螺环结构打开. 而同样条件下金属离子 Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} ,

图 1 (a)化合物 **L1** 对金属离子的选择性(探针 **L1** 和金属离子的浓度均为 20 $\mu\text{mol/L}$); (b)其它金属离子和 Fe^{3+} 共存时探针 **L1** 荧光发射光谱的变化

Figure 1 (a) Fluorescence response of probe **L1** (20 $\mu\text{mol/L}$) to different metal ions; (b) Fluorescence emission spectrum of **L1** (20 $\mu\text{mol/L}$) upon addition of 20 $\mu\text{mol/L}$ various metal ions in and without the presence of Fe^{3+}

1, Na^+ ; 2, K^+ ; 3, Mg^{2+} ; 4, Ca^{2+} ; 5, Cr^{3+} ; 6, Hg^{2+} ; 7, Cu^{2+} ; 8, Ag^+ ; 9, Co^{2+} ; 10, Mn^{2+} ; 11, Cd^{2+} ; 12, Ni^{2+} ; 13, Pb^{2+} ; 14, Zn^{2+} ; 15, Fe^{3+}

Zn^{2+} , Cd^{2+} , Co^{2+} , Ni^{2+} , Pb^{2+} , Cu^{2+} , Mn^{2+} , Ag^+ , Hg^{2+} , Cr^{3+} 却不能引起荧光强度的变化. 进一步考察了其它金属离子和 Fe^{3+} 共存时对 Fe^{3+} 测定的干扰, 所有离子的浓度均为 $20 \mu\text{mol/L}$, 黑色柱状图代表加入不同的金属离子, 红色柱状图代表在 Fe^{3+} 存在时加入不同的金属离子. 从图 1(b)可以看出, 在共存离子存在下, 探针 **L1** 对 Fe^{3+} 的识别具有较强的抗干扰能力. 说明 **L1** 是一个较高选择性的荧光增强性 Fe^{3+} 比色探针.

1.3.2 不同浓度的 Fe^{3+} 对化合物 **L1** 荧光光谱的影响.

图 2(a)是记录荧光探针 **L1** 在 $0 \sim 1.2 \text{ equiv.}$ Fe^{3+} 浓度下荧光发射光谱的变化. 谱数据显示, 化合物 **L1** 的最大发射波长在 588 nm 处. 随着 Fe^{3+} 浓度的逐渐增大, 其最大荧光强度不断增强. 当过量的 Fe^{3+} 存在时, 探针化合物 **L1** 在最大发射波长处的荧光发射强度仍有所增加, 但从图 2(b)可以看出增加趋势已经明显减弱. 表明 **L1** 与 Fe^{3+} 存在着良好的络合作用.

图 2 (a) **L1** ($20 \mu\text{mol/L}$) 中逐渐加入 Fe^{3+} 的荧光发射光谱的变化曲线图; (b) **L1** 的荧光发射光谱与 Fe^{3+} 浓度关系图(激发波长为: 550 nm , 发射波长为: 588 nm)

Figure 2 (a) Fluorescence emission spectrum of **L1** ($20 \mu\text{mol/L}$) in the presence of Fe^{3+} with concentration increased; (b) Emission spectra of compound **L1** as a function of Fe^{3+} concentration ($\lambda_{\text{ex}} = 550 \text{ nm}$, $\lambda_{\text{em}} = 588 \text{ nm}$)

化合物 **L1** 对 Fe^{3+} 响应灵敏. 实验结果显示, Fe^{3+} 在 $1 \times 10^{-6} \sim 9 \times 10^{-6} \text{ mol/L}$ 浓度范围以内, 以 Fe^{3+} 浓度为自变量, 探针 **L1** 的荧光发射强度为应变量作图发现(图 3), 随着 Fe^{3+} 浓度的逐渐变化, 化合物 **L1** 荧光强度的增加和 Fe^{3+} 浓度出现较好的线性关系, 通过拟合得到线性回归方程 $y = 138.5x + 11.07$ (线性相关系数: $R^2 = 0.9743$). 这表明化合物 **L1** 可以用来定量检测 Fe^{3+} 浓度.

图 3 **L1** 的荧光强度随 Fe^{3+} 浓度($1 \times 10^{-6} \sim 9 \times 10^{-6} \text{ mol/L}$)变化的线性关系图

Figure 3 Fluorescence intensity of **L1** as a function of concentration of Fe^{3+} ($1 \times 10^{-6} \sim 9 \times 10^{-6} \text{ mol/L}$)

1.3.3 探针 **L1** 和 Fe^{3+} 的络合方式

为了进一步确定探针化合物 **L1** 和金属离子之间的络合比, 我们绘制了探针 **L1** 和 Fe^{3+} 的络合曲线. 将 **L1** 和 Fe^{3+} 的总浓度保持为 ($20 \mu\text{mol/L}$). 从曲线可以清晰地看到, 改变 Fe^{3+} 的摩尔分数, 探针 **L1** 在最大发射波长处的荧光强度随之变化(图 4). 当 Fe^{3+} 的摩尔分数为 0.5 时, 荧光探针 **L1** 和 Fe^{3+} 络合物在 588 nm 处出现最大的荧光发射, 表明探针化合物 **L1** 与 Fe^{3+} 为 $1:1$ 络合.

图 4 探针 **L1** 和 Fe^{3+} 的 Job 曲线
Figure 4 Job's plot of probe **L1** and Fe^{3+}

1.3.4 pH 对化合物 **L1** 和 **L1** + Fe^{3+} 荧光光谱的影响

L1 作为 Fe^{3+} 的选择性荧光探针主要是基于罗丹明

类化合物螺酰胺环的“off-on”机理,而溶液 pH 的大小会改变内酰胺的存在形式,进而影响 **L1** 的荧光响应. 图 5 为探针化合物 **L1** 及 **L1**+Fe³⁺ 分别在其最大发射波长(588 nm)处的荧光强度与 pH 关系曲线. 可以看出, pH 为 2~4 之间, 探针 **L1** 的荧光强度随着 pH 值的减小而大幅度增加, 这可能是在酸性条件下化合物 **L1** 的内酰胺螺环被打开导致荧光增强. pH 为 4~12 范围内, 探针 **L1** 的荧光强度变化不大. 说明在该区间内化合物 **L1** 主要以内酰胺的形式稳定存在. 当加入 20 $\mu\text{mol/L}$ 的 Fe³⁺ 以后, pH 在 4~7 之间, 化合物 **L1** 的荧光强度保持不变; pH 在 7~8 之间, 荧光强度随 pH 的增加减小, 这可能是在碱性条件下, Fe³⁺ 会形成 Fe(OH)₃, 从而减少了其与化合物 **L1** 的配位; pH 为 8~12 之间的荧光强度基本保持不变且和 pH 在 4~12 之间不加 Fe³⁺ 时化合物 **L1** 荧光相差不多. 由此可见, 在 pH 为 4~7 的范围内, 探针化合物 **L1** 对 Fe³⁺ 的检测不受 pH 的影响. 这将非常有利于其在细胞及生物体内进一步的应用.

图 5 pH 对 **L1** 和 **L1**+Fe³⁺ 荧光强度(λ_{em} =588 nm)的影响
Figure 5 Effect of pH on the emission intensity of **L1** and its Fe³⁺-complex at 588 nm

2 结论

综上所述, 本文以罗丹明 B 和间氨基吡啶为原料合成了一种新型的 Fe³⁺ 的荧光探针. 并对其结构进行(IR, HRMS, ¹H NMR 和 ¹³C NMR)表征. 探针 **L1** 的晶体结构能更加直观说明化合物组成. 研究发现, 该探针分子对 Fe³⁺ 具有较好的选择识别性. Fe³⁺ 浓度在 $1 \times 10^{-6} \sim 9 \times 10^{-6} \text{ mol/L}$ 范围内, 探针 **L1** 的荧光强度和 Fe³⁺ 的浓度具有一定的线性关系, 可定量检测出该范围内的 Fe³⁺ 含量. 对研究生物体内及其环境中 Fe³⁺ 的识别检测具有一定的指导意义.

3 实验部分

3.1 主要仪器与试剂

WRS-1A 型数字熔点测定仪(上海精密科学仪器有限公司); Vario EL CHNOS 元素分析仪(德国艾乐曼元素分析系统公司); INOVA-400 型超导核磁共振仪(TMS 作内标, 美国 Varian 公司); MALDI-TOF MS 基质辅助飞行时间质谱仪(Kratos AXIMA-CFR plus Shimadzu Co. UK); Bruker SMART APEXII-CCD X 射线单晶衍射仪(德国布鲁克公司); F-4500 荧光分光光度计(日本日立公司).

所有试剂均为国产市售分析纯, 二氯乙烷和乙腈经干燥处理, 纯净水(去离子处理). 金属离子溶液通过 NaCl, KCl, Co(NO₃)₂·6H₂O, Cu(NO₃)₂·3H₂O, Ni(NO₃)₂·6H₂O, Cd(NO₃)₂·2H₂O, Fe(NO₃)₃·9H₂O, Mg(NO₃)₂·6H₂O, Mn(NO₃)₂, Zn(NO₃)₂·6H₂O, Ca(NO₃)₂·4H₂O, HgCl₂, Cr(NO₃)₃·9H₂O, AgNO₃, Pb(NO₃)₂, 溶于纯净水制得.

3.2 化合物 **L1** 的合成和结构表征

化合物 **L1** 的合成, 将 0.96 g (2 mmol) 罗丹明 B 和 5 mL 二氯乙烷加入三颈烧瓶中, 搅拌下滴加三氯氧磷 (1.5 mL). 回流反应 6 h. 反应物冷却至室温, 浓缩除去二氯乙烷和剩余的三氯氧磷, 所得化合物 **1** 保留在少许乙腈中. 待用. 将 0.374 g (4 mmol) 3-氨基吡啶和 10 mL 的乙腈加入混合物 **1** 中, 再滴加 1.5 mL 三乙胺. 加热至 83 $^{\circ}\text{C}$ 反应 4 h, TLC 监测反应进程. 反应完毕, 将混合物倾入冰水中, 二氯甲烷萃取, 有机相以饱和食盐水洗涤, 无水硫酸镁干燥, 浓缩后柱层析纯化得到 0.68 g 化合物 **L1**, 白色粉末, 产率 65.6%. m.p. 226~227 $^{\circ}\text{C}$; ¹H NMR (CDCl₃, 400 Hz) δ : 1.14 (t, $J=8$ Hz, 12H), 3.32 (q, $J=8$ Hz, 8H), 6.25 (s, 2H), 6.30 (d, $J=8$ Hz, 2H), 6.64 (d, $J=8.0$ Hz, 2H), 7.08~7.11 (m, 1H), 7.20 (q, $J=8.0$ Hz, 2H), 7.43~7.55 (m, 2H), 8.02 (d, $J=8.0$ Hz, 1H), 8.09 (s, 1H), 8.33 (d, $J=4.0$ Hz, 1H); IR (KBr) ν : 3037, 2967, 2925, 1693, 1612, 1544, 1514, 1473, 1423, 1347, 1265, 1117, 944, 862, 789, 756, 701, 630, 575, 533, 456 cm^{-1} ; ¹³C NMR (CDCl₃, 100 MHz) δ : 6.89, 38.63, 61.87, 92.00, 99.88, 102.49, 117.67, 117.77, 118.40, 122.63, 122.93, 124.64, 127.56, 127.87, 128.68, 141.74, 142.45, 143.18, 147.33, 147.56, 162.22; MALDI-TOF MS m/z : 519.2745 ($M^+ + 1$). Anal. calcd for C₃₃H₃₄N₄O₂: C 76.42, H 6.61, N 10.80, found C 76.58, H 6.72, N 10.96.

3.3 化合物 **L1** 的晶体结构

单晶 X 射线衍射测试表明化合物 **L1** 的晶体结构属于单斜晶系(Monoclinic), $P2(1)/c$ 空间群. 化合物 **L1** 的分子式为 C₃₃H₃₄N₄O₂ ($M_r=518.64$), 晶胞参数为 $a =$

2.548(3) Å, $b=12.527(3)$ Å, $c=17.484(4)$ Å, $\alpha=90.00^\circ$, $\beta=93.155(5)^\circ$, $\gamma=90.00^\circ$, $V=2744.1(10)$ Å³, $D_c=1.255$ Mg/m³, $\mu=0.079$ mm⁻¹, $Z=2$, $F(000)=1104$, 光源: Mo K α 射线($\lambda=0.071073$ nm). 最终偏离因子: $R_1=0.0941$, $wR_2=0.2106$; 偏离因子: $R_1=0.1968$, $wR_2=0.2900$, 扫描范围 $1.63^\circ\sim5.09^\circ$, 最大电子云密度 0.784, GOF = 1.030. 衍射点/独立衍射点 13602/4873, 扫描方式: $\omega-2\theta$, 寻找衍射峰收集所有的衍射数据. 精修方法 Full-matrix least-squares on F^2 . Cambridge Crystallographic Data Centr (CCDC): 932994. 晶体结构如图 6 所示.

图 6 化合物 L1 的晶体结构
Figure 6 Crystal structure of L1

晶体结构分析表明: 化合物 L1 的分子结构中, 没有对称中心, 每个分子有 3 个主平面. 其中 C(6)—O(1)—C(12)平面和 C(22)—C(24)—N(3)平面相互垂直, 夹角是 89.8° . C(6)—O(1)—C(12)平面与吡啶环所构成的平面夹角 42.3° . 其晶体结构由直接法通过 SHELXTL 软件解得, 全部非氢原子经 Fourier 合成及差值电子密度函数修正. 他的氢原子坐标通过程序理论计算获得. 非氢原子坐标、各向异性温度因子以及氢原子坐标及各向同性温度因子, 经全矩阵最小二乘法 F^2 精修修正至收敛.

3.4 探针光谱测定

将化合物 L1 用甲醇配成 2×10^{-4} mol/L 溶液, 金属盐用纯净水配 2×10^{-4} mol/L 溶液. 探针 L1 溶液 1 mL 置于 10 mL 比色管中, 然后分别加入当量的不同金属离子溶液, 并用蒸馏水稀释至刻度. 荡超声使其混合均匀. 测定其荧光发射光谱(选择性、竞争性、浓度梯度、Job 曲线等)及 pH 对探针分子荧光发射光谱的影响. pH 由 1 mol/L HCl 和 NaOH 调节.

测试条件: 室温, 样品池为 $1\text{ cm}\times1\text{ cm}\times4\text{ cm}$ 石英比色皿, 激发狭缝宽度 2.5 nm, 发射狭缝宽度 5.0 nm. 激发波长 λ_{ex} 为 550 nm, 灵敏度为 1, 响应时间 0.5 s, 于

560~700 nm 范围内检测荧光.

References

- [1] James, P.; Raoul, K. *Analyst* **2005**, *130*, 528.
- [2] Weizman, H.; Ardon, O.; Mester, B.; Libman, J.; Dwir, O.; Hadar, Y.; Chen, Y.; Shanzer, A. *J. Am. Chem. Soc.* **1996**, *118*, 12368.
- [3] Hu, X.-H. *J. Pract. Radiol.* **2011**, *27*, 791 (in Chinese). (胡晓华, 实用放射学杂志, **2011**, *27*, 791.)
- [4] Aquino, D.; Bizzi, A.; Grisoli, M. *Radiology* **2009**, *252*, 165.
- [5] Mao, J.; He, Q.; Liu, W.-S. *Talanta* **2010**, *80*, 2093.
- [6] Ma, Y.-M.; Hider, R. C. *Bioorg. Med. Chem.* **2009**, *17*, 8093.
- [7] Dornelles, A. S.; Garcia, V. A.; Vedana, G.; Alcalde, L. A.; Bogo, M. C.; Schroder, N. *Neurochem. Res.* **2010**, *35*, 564.
- [8] Crichton, R. R.; Dexter, D. T.; Ward, R. J. *Coord. Chem. Rev.* **2008**, *252*, 1189.
- [9] Esposito, B. P.; Epsztejn, S.; Breue, W.; Cabantchik, Z. I. *Anal. Biochem.* **2002**, *304*, 18.
- [10] Lunvongsa, S.; Oshima, M.; Motomizu, S. *Talanta* **2006**, *68*, 969.
- [11] Tesfaldet, Z. O.; Van Staden, J. F.; Stefan, R. I. *Talanta* **2004**, *64*, 1189.
- [12] Ohashi, A.; Ito, H.; Kanai, C.; Imura, H.; Ohashi, K. *Talanta* **2005**, *65*, 525.
- [13] Bobrowski, A.; Nowak, K.; Zarebski, J. *Anal. Bioanal. Chem.* **2005**, *382*, 1691.
- [14] Donga, L.; Wua, C.; Zenga, X.; Mua, L.; Xuea, S. F.; Taoa, Z. *Sens. Actuators, B* **2010**, *145*, 433.
- [15] Xiang, Y.; Tong, A.-J. *Org. Lett.* **2006**, *8*, 1549.
- [16] Mansell, D.; Rattray, N.; Etchells, L. L.; Schwalbe, C. H.; Blake, A. J.; Bichenkova, E. V. *Chem. Commun.* **2008**, 5161.
- [17] Lin, W.-Y.; Yuan, L.; Feng, J.-B.; Cao, X.-W. *Eur. J. Org. Chem.* **2008**, 2689.
- [18] Yuan, Y.-H.; Tian, M.-Z.; Feng, F.; Meng, S.-M.; Bai, Y.-F. *Prog. Chem.* **2010**, *22*, 1093 (in Chinese). (袁跃华, 田茂忠, 冯锋, 孟双明, 白云峰, 化学进展, **2010**, *22*, 1093.)
- [19] Sun, W.; Hu, D.-Y.; Wu, Z.-B.; Song, B.-A.; Yang, S. *Chin. J. Org. Chem.* **2011**, *31*, 997 (in Chinese). (孙伟, 胡德禹, 吴志兵, 宋宝安, 杨松, 有机化学, **2011**, *31*, 997.)
- [20] Li, N.; Liu, M.-L.; Yin, W.-T.; Yang, Z.; Li, J.-L.; Shi, Z. *Chin. J. Org. Chem.* **2011**, *31*, 39 (in Chinese). (李娜, 刘美玲, 尹文婷, 杨征, 李剑利, 史真, 有机化学, **2011**, *31*, 39.)
- [21] Kaewtong, C.; Wann, B.; Uppa, Y.; Morakot, N.; Pulpokac, B.; Tuntulan, T. *Dalton Trans.* **2011**, *40*, 12578.
- [22] Luo, J.; Jiang, S.-S.; Qin, S.-H.; Wu, H.-Q.; Wang, Y.; Jiang, J.-Q.; Liu, X.-Y. *Sens. Actuators, B* **2011**, *160*, 1191.
- [23] Chereddy, N. R.; Suman, K.; Korrapati, P. S.; Thennarasu, S.; Mandal, A. B. *Dyes Pigm.* **2012**, *95*, 606.
- [24] Li, J.-B.; Hu, Q.-H.; Zeng, Y.; Yu, X.-L.; Pan, Z.-Q. *Prog. Chem.* **2012**, *24*, 823 (in Chinese). (黎俊波, 胡启辉, 曾阳, 余响林, 潘志权, 化学进展, **2012**, *24*, 823.)
- [25] Zhang, W.-J.; Wang, Z.-M.; Qu, F.-L. *Chem. Sensors* **2010**, *30*, 36 (in Chinese). (张卫军, 王作茂, 渠凤丽, 化学传感器, **2010**, *30*, 36.)
- [26] Yang, Z.; She, M.-Y.; Yin, B.; Cui, J.-H.; Zhang, Y.-Z.; Sun, W.; Li, J.-L.; Shi, Z. *J. Org. Chem.* **2012**, *77*, 1143.

(Li, L.; Lu, Z.)