

基于荧光共振能量转移效应的比例计量型水合肼荧光探针的设计、合成及其应用研究

杨滋琦^a 刘兴坤^b 姜鲁南^b 王美^{*a}

(^a河北大学化学与环境科学学院 保定 071002)

(^b河北大学药学院 保定 071002)

摘要 水合肼(N_2H_4)是一种高毒性水溶生化试剂，具有致癌、致畸、致突变的能力。为了准确检测环境及生命体内 N_2H_4 浓度，基于荧光共振能量转移(FRET)原理，设计合成了两个双发射比例计量型探针(FRET-1/2)，探针结构均经核磁共振氢谱、碳谱和高分辨质谱确证。研究结果表明，两个探针对 N_2H_4 均表现出较高的选择性和良好的灵敏性，可用于检测水样中 N_2H_4 浓度。

关键词 水合肼；荧光共振能量转移(FRET)；比例计量；荧光探针

Design, Synthesis and Application of Fluorescence Resonance Energy Transfer-Based Ratiometric Hydrazine Fluorescent Probe

Yang, Ziqi^a Liu, Xingkun^b Jiang, Lu'nan^b Wang, Mei^{*a}

(^aCollege of Chemistry and Environmental Science, Hebei University, Baoding 071002)

(^bCollege of Pharmacy, Hebei University, Baoding 071002)

Abstract Hydrazine (N_2H_4) is a highly toxic biochemical reagent with the capability of mutagenic, teratogenic and carcinogenic. For accurately monitoring the concentration of N_2H_4 in the environment and life, two FRET (fluorescence resonance energy transfer)-based dual-emissive ratiometric fluorescent probes (FRET-1/2) were designed and synthesized. The structures of both probes were characterized by 1H NMR, ^{13}C NMR and HRMS. The results prove that both probes exhibit good selectivity and sensitivity to N_2H_4 and can be used for detecting N_2H_4 in water samples.

Keywords hydrazine; fluorescence resonance energy transfer (FRET); ratiometric; fluorescent probe

水合肼(N_2H_4)是一种重要工业化学品，已经被广泛应用于制备医药、农药、纺织染料、感光材料、乳化剂、腐蚀抑制剂等^[1]。同时，它也是一种高毒性水溶生化试剂，具有致癌、致畸、致突变的“三致效应”。它可以通过口鼻呼吸和皮肤渗透等途径对人体肝脏、呼吸系统和神经系统造成损伤^[2]。在 N_2H_4 的生产、运输和使用过程中，一旦操作不当，就会对环境和人类健康造成威胁。因此，美国环境保护署(EPA)和世界卫生组织(WHO)已经将 N_2H_4 归为可能致癌的环境污染物^[3]。虽然人体不会内源产生 N_2H_4 ，但是一些药物在人体内会代谢产生

N_2H_4 。例如，异烟肼(isoniazid)作为治疗隐性和活性结核病的一线药物，在代谢过程中会原位产生 N_2H_4 ，对人的肝脏造成一定程度的损伤^[4]。基于此，发展“可视化” N_2H_4 分子的工具将有助于精确检测环境及生命体内 N_2H_4 的浓度，有效降低 N_2H_4 造成的风险，并有可能进一步揭示 N_2H_4 的病理学作用。

与 N_2H_4 的传统检测方法相比，荧光方法因其操作简便、选择性好、灵敏度高，尤其对生物样本不会造成侵入性损伤，更适合用于活细胞甚至整个活体成像，已经成为检测一些环境污染物以及内源性生物分子的首

* Corresponding author. E-mail: wangmarijan@163.com

Received November 28, 2018; revised January 7, 2019; published online January 18, 2019.

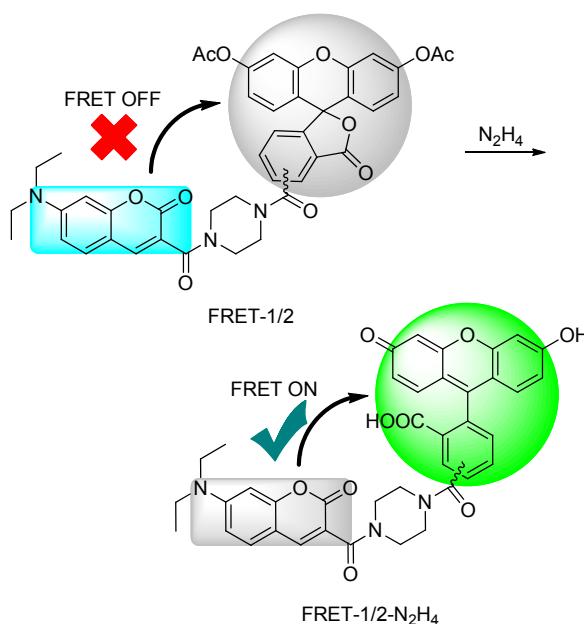
Project supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 51578067), the Natural Science Foundation of Hebei Province (No. 2018201234), the Colleges and Universities Science Technology Research Project of Hebei Province (No. QN2017015) and the Science Technology Research and Development Guidance Programme Project of Baoding City (Nos. 16zg031, 18ZF315).

国家自然科学基金(No. 51578067)、河北省自然科学基金(No. 2018201234)、河北省高等学校科学技术研究项目(No. QN2017015)和保定市科学研究与发展计划(Nos. 16zg031, 18ZF315)资助项目。



选方法^[5]。目前, N_2H_4 荧光探针主要分为 Off-On 型和比例计量型^[6~28]。前者易受样品环境、荧光强度等外界因素的干扰^[6~18]; 后者具有双波长比例内校正功能, 通过测定探针与 N_2H_4 反应前后双发射峰的比例荧光变化, 可实现对 N_2H_4 的精确定量检测^[19~25]。分子内电荷转移(ICT) 和荧光共振能量转移(FRET) 是构建比例计量型荧光探针两种主要的光物理扰动原理^[29~33]。已报道的比例计量型 N_2H_4 荧光探针主要基于 ICT 原理^[19~25]。利用 FRET 原理构建比例计量型探针, 可以灵活选择 FRET 供体和受体, 可以灵活地把反应基团连接到 FRET 供体或者受体上, 实现双发射(或双激发)比例计量检测。

本文以 7-(*N,N*-二乙胺基)-3-羧基香豆素为 FRET 供体, 荧光素为 FRET 受体, 乙酰酯基为 N_2H_4 识别基团, 经过 5 步有机合成, 得到两个比例计量型双发射 N_2H_4 荧光探针, 测试了探针对 N_2H_4 的选择性和灵敏性, 评估了探针用于实际水样中检测 N_2H_4 的能力。



图式 1 探针 FRET-1/2 与 N_2H_4 识别机理示意图

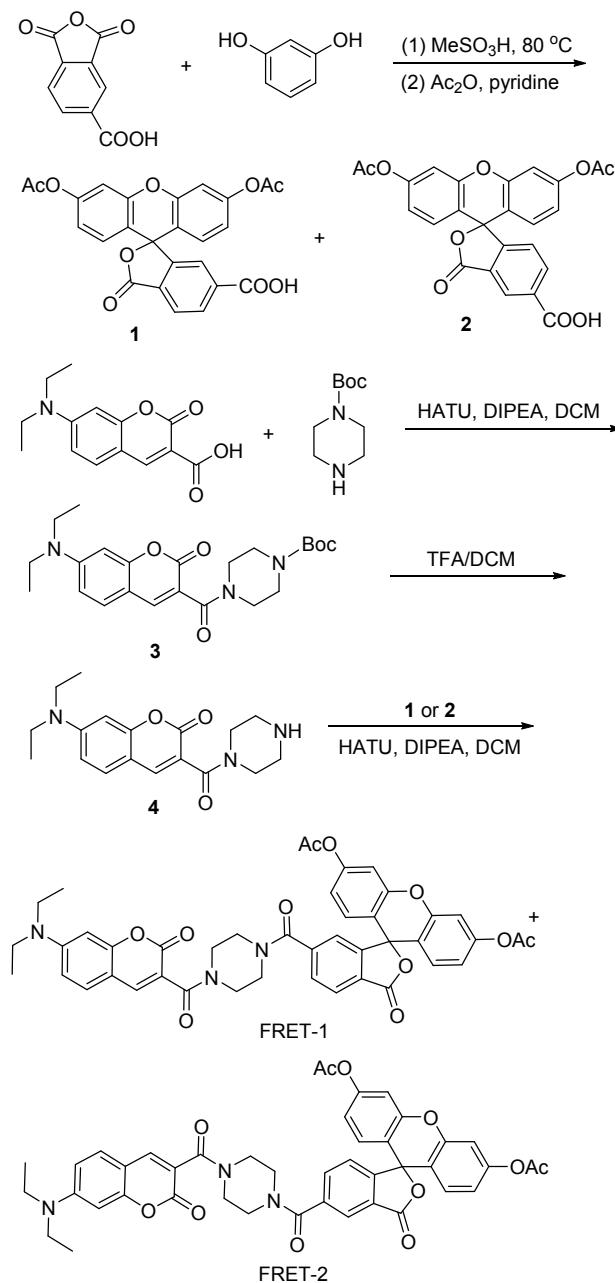
Scheme 1 Illustration of fluorescence sensing mechanism for N_2H_4 detection

1 结果与讨论

1.1 荧光探针 FRET-1/2 的设计与合成

比例计量型荧光探针能够通过自身双波长比例内校正功能, 有效消除测试环境(如激发光强度、溶剂、生物体自荧光等)对测试结果准确性的影响。FRET 是构建比例计量型荧光探针的经典方法, 它要求 FRET 供体的荧光发射光谱和 FRET 受体的紫外吸收光谱具有一定程度的重叠。本文以经典的 7-(*N,N*-二乙胺基)-3-羧基香豆素和荧光素分别作为 FRET 供体和受体, 乙酰酯基作为

N_2H_4 的识别基团并修饰在 FRET 受体荧光素上, 构建了两个双发射比例计量型探针 FRET-1/2。香豆素和荧光素能够满足 FRET 发生的基本要求, 并且具有较高的荧光量子产率和摩尔吸光系数, 双反应位点的引入有利于提高探针的选择性。如 Scheme 2 所示, 通过 5 步简单的有机合成, 得到两个双发射比例计量型 N_2H_4 荧光探针 FRET-1/2。



图式 2 探针 FRET-1/2 的合成路线

Scheme 2 Synthesis of probes FRET-1/2

探针结构中双乙酰酯基的引入, 使荧光素具有螺内酯结构, 其氧杂蒽共轭结构被破坏, 在 450~550 nm 范围内没有明显的紫外吸收。以 405 nm 激发时, 探针只表现出香豆素 475 nm 处的荧光最大发射, FRET 被抑制;

探针与 N_2H_4 反应后，荧光素的螺内酯结构被打开，其氧杂蒽共轭结构得到恢复，在 450~550 nm 范围内产生较强的紫外吸收。以 420 nm 激发时，香豆素 475 nm 处荧光强度减弱，荧光素 525 nm 处的荧光强度增强。FRET 供体香豆素的荧光发射光谱与 FRET 受体荧光素的紫外吸收光谱产生明显的光谱重叠，FRET 发生(图 1)。

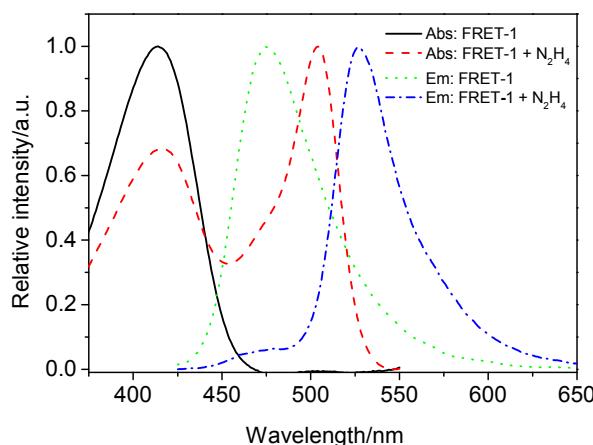


图 1 探针 FRET-1 与 N_2H_4 反应前后的紫外吸收光谱和荧光发射光谱归一化曲线

Figure 1 Normalized curves of UV-Vis and fluorescence emission spectrum of FRET-1 before and after the reaction with N_2H_4

1.2 荧光探针 FRET-1/2 的选择性研究

高度专一的选择性是荧光探针性能优良的主要指标。探针在检测肼过程中，易受胺类化合物、肼类似物的干扰。为了评价探针的选择性，测试了探针对多种潜在干扰物的荧光光谱，这些潜在干扰物包括金属离子(Cr^{2+} 、 Fe^{3+} 、 Co^{2+} 、 Cu^{2+} 、 Zn^{2+} 、 Mn^{2+} 、 Li^+ 、 Mg^{2+} 、 Pb^{2+} 、 Ca^{2+} 、 Ag^+)、阴离子(I^- 、 $\text{C}_2\text{O}_4^{2-}$ 、 SiO_3^{2-} 、 NO_3^- 、 N_3^-)、胺类化合物(TEA、氨水、羟胺、乙二胺)和乙酰肼。如图 2 所示，两种探针溶液与 200 equiv. 潜在干扰物种共孵育，除羟胺引起一定程度荧光响应外，其它干扰物并没有使探针的荧光光谱发生明显变化。探针与 N_2H_4 反应后，在 475 nm 处的荧光明显减弱，525 nm 处的荧光显著增强。计算探针 FRET-1/2 的比率值 $I_{535\text{nm}/570\text{nm}}$ 分别为 32.6 和 40.8，说明对 N_2H_4 识别均表现出较高的选择性。竞争选择性实验表明，探针能够在复杂环境中对 N_2H_4 进行选择性检测。同时，探针在 pH 5.0~10.0 范围内稳定性良好，对 N_2H_4 响应能力基本保持不变。

1.3 荧光探针 FRET-1/2 的灵敏性研究

为了评价探针的灵敏性，测试了探针与不同浓度 N_2H_4 反应的荧光滴定光谱。如图 3 所示，随着 N_2H_4 浓度逐渐增大，探针的荧光发射强度呈现比例变化，其在 475 nm 处的荧光强度逐渐减弱，在 525 nm 处的荧光强

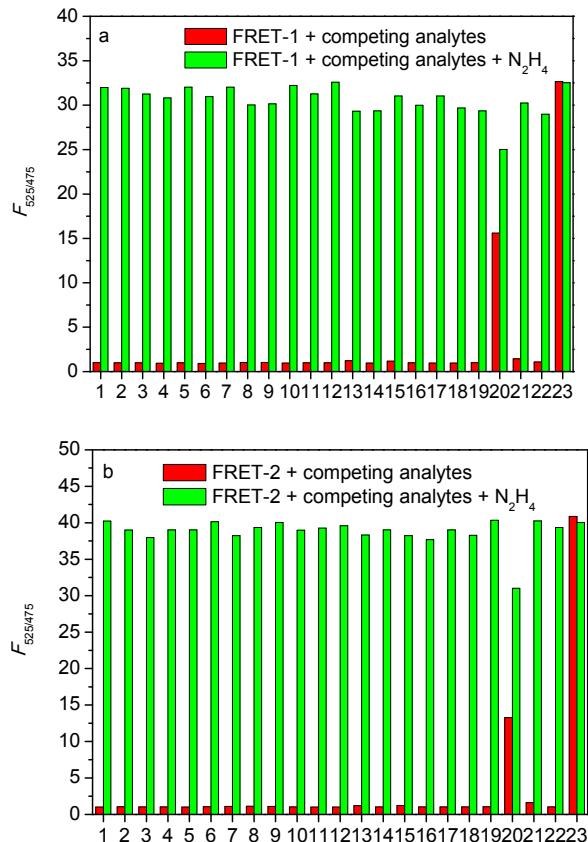


图 2 探针 FRET-1/2 ($2.5 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$) 加入各种潜在干扰物($500 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$)后的比例荧光变化图

Figure 2 Ratiometric fluorescence response (F_{525}/F_{475}) of FRET-1/2 ($2.5 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$) to potential interfering species ($500 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$)

1, probe only; 2, Cr^{2+} ; 3, Fe^{3+} ; 4, Co^{2+} ; 5, Cu^{2+} ; 6, Zn^{2+} ; 7, Mn^{2+} ; 8, Li^+ ; 9, Mg^{2+} ; 10, Pb^{2+} ; 11, Ca^{2+} ; 12, Ag^+ ; 13, I^- ; 14, $\text{C}_2\text{O}_4^{2-}$; 15, SiO_3^{2-} ; 16, SiO_3^- ; 17, N_3^- ; 18, TEA; 19, ammonium hydroxide; 20, NH_2OH ; 21, acetyl gydrazine; 22, EEA; 23, N_2H_4

度逐渐增强。探针在 525 和 475 nm 处的荧光比率值 ($F_{535\text{nm}/470\text{nm}}$) 与 N_2H_4 浓度($150\sim350 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$)具有较好的线性关系(线性相关系数: $R^2>0.99$)，表明探针可以定量检测 N_2H_4 。根据 $3\sigma/k$ 的计算方法^[34]，探针 FRET-1/2 的检测极限分别为 100 和 $76 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$ ，与文献报道的其它比例计量型探针相当。测试结果远远低于 EPA 和 WHO 规定的阈极限值 $100 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$ ，表明探针可以用于低浓度 N_2H_4 检测。同时，从溶液荧光颜色可以看到，探针本身发射香豆素的青蓝色荧光(量子产率分别为 0.15 和 0.12)，与 N_2H_4 反应后，溶液呈现荧光素的黄绿色荧光(量子产率分别为 0.56 和 0.57)。

1.4 荧光探针 FRET-1/2 的识别机制研究

N_2H_4 具有碱性，可以水解酯基。如图 1 所示，探针本身只有 350~450 nm 范围内香豆素的紫外吸收，与 N_2H_4 反应后，探针在 450~550 nm 范围内出现荧光素的紫外吸收。通过高分辨质谱发现，探针与 N_2H_4 反应后，

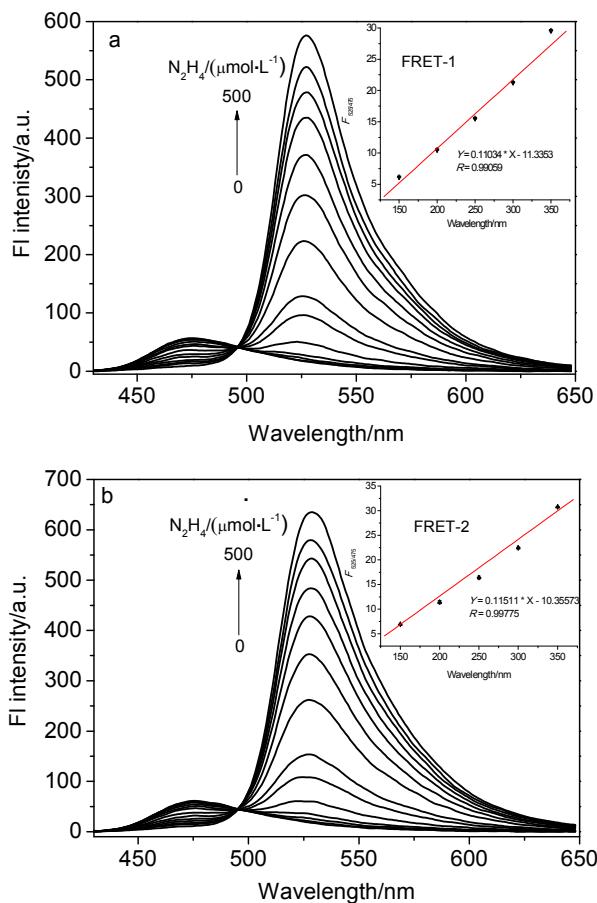
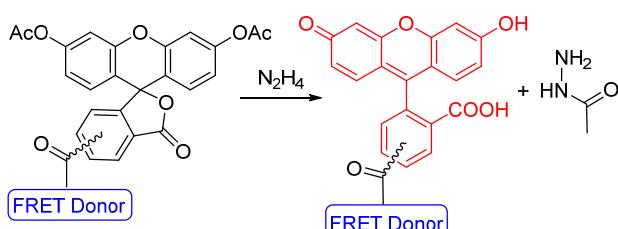
图 3 探针 FRET-1/2 ($5 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$) 的荧光滴定曲线

Figure 3 Fluorescence titration curve of FRET-1/2 ($5 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$)

分别出现 m/z 688.2284 和 688.2283 分子离子峰，分别与化合物 FRET-1-N₂H₄ 和 FRET-2-N₂H₄ 的理论分子量相符 ($[\text{M}+\text{H}]^+$, 688.2295)。以上结果表明，N₂H₄ 水解探针结构中荧光素部分的双乙酰酯基为羟基，使得荧光素螺内酯被打开，释放荧光素的荧光，与已报道文献相符^[9,17,21,22]。其机理如 Scheme 3 所示。

图式 3 探针 FRET-1/2 对 N₂H₄ 的识别机制

Scheme 3 Sensing mechanism of probe FRET-1/2 to N₂H₄

1.5 荧光探针 FRET-1 用于水样中 N₂H₄ 检测

为了评价探针用于检测实际水样中 N₂H₄ 的能力，向自来水和蒸馏水中加入一定浓度的 N₂H₄，利用图 3 的标准曲线进行测量。如表 1 所示，检测结果与实际加入 N₂H₄ 量基本一致，说明探针可以用于实际样品中 N₂H₄

的检测。

表 1 水样中 N₂H₄ 的检测结果

Table 1 Results for the determination of hydrazine in water samples

水样 ^a	N ₂ H ₄ 加入量 ^b	N ₂ H ₄ 检测值	回收率/%
自来水	175	180	102
	225	213	94.6
	300	312	104
蒸馏水	175	172	98.2
	225	227	101
	300	293	97.6

2 结论

本文基于 FRET 原理，以香豆素为 FRET 供体，荧光素为 FRET 受体，乙酰酯基为 N₂H₄ 反应基团，设计合成了两个双发射比例计量型 N₂H₄ 荧光探针。探针 FRET-1/2 对 N₂H₄ 具有较高的选择性和较好的灵敏性，检测极限分别为 100 和 76 nmol·L⁻¹。探针可以用于实际水样中 N₂H₄ 的检测。

3 实验部分

3.1 仪器与试剂

Brucker 核磁共振仪 (400 MHz); Varian 7.0 T FTICR-MS 质谱仪(美国 Agilent 公司); Cary Eclipse 荧光光谱仪(美国 Varian 公司); Cary 100 bio 分光光度计(美国 Varian 公司)。

柱层析用硅胶(100~200 目)及 GF254 薄层层析硅胶为青岛海洋化工厂产品；所用试剂和溶剂均为国产或进口，分析纯或者化学纯试剂，无水试剂均按常规方法处理。

3.2 实验方法

3.2.1 化合物 1~4 的合成

化合物 1~4 按照已报道方法进行合成。

荧光素双乙酸酯-6'-羧酸(1)：白色固体，m.p. 187.2~189.1 °C; ¹H NMR (400 MHz, DMSO-*d*₆) δ : 8.27 (d, *J*=8.0 Hz, 1H), 8.18 (d, *J*=8.0 Hz, 1H), 7.85 (s, 1H), 7.29 (s, 2H), 6.95 (s, 4H), 2.28 (s, 6H). HRMS calcd for C₂₅H₁₇O₉ 461.0873, found 461.0864.

荧光素双乙酸酯-5'-羧酸(2)：白色固体，m.p. 194.5~196.0 °C; ¹H NMR (400 MHz, DMSO-*d*₆) δ : 8.44 (s, 1H), 8.32 (q, *J*=3.2, 8.0 Hz, 1H), 7.55 (d, *J*=8.0 Hz, 1H), 6.99~6.93 (m, 4H), 2.29 (s, 6H). HRMS calcd for C₂₅H₁₇O₉ 461.0873, found 461.0868.

7-(二乙胺基)香豆素-3-羧酸 *N*-叔丁基羰基哌嗪酰胺(3)：淡黄色固体，m.p. 175.5~178.0 °C(文献值^[35] 176~179 °C); ¹H NMR (400 MHz, CDCl₃) δ : 7.86 (s, 1H), 7.31

(d, $J=8.8$ Hz, 1H), 6.66 (d, $J=8.4$ Hz, 1H), 6.52 (s, 1H), 3.71 (bs, 2H), 3.49 (bs, 4H), 3.42 (q, $J=7.2$ Hz, 4H), 3.37 (bs, 2H), 1.45 (s, 9H), 1.21 (t, $J=7.2$ Hz, 6H).

7-(二乙胺基)香豆素-3-羧酸N-氢哌嗪酰胺(4):由化合物**3**经三氟乙酸的二氯甲烷溶剂($V/V=1/1$)脱除, 蒸除溶剂后, 未纯化, 直接进行后续反应。m.p. 199.2~202 °C (文献值^[35] 201~203 °C)。HRMS calcd for C₂₅H₁₇O₉ 330.1812, found 330.1815。

3.2.2 探针 FRET-1/2 的合成

将 230 mg (0.50 mmol) 化合物**1/2**溶解于 20 mL 无水二氯甲烷, 加入 228 mg (0.60 mmol) O-(7-氮杂苯并三唑-1-基)-N,N,N',N'-四甲基脲六氟磷酸酯(HATU), 室温搅拌 30 min 后, 依次加入 115 mg (0.50 mmol) 化合物**4** 和 174 μL (1.00 mmol) N,N-二异丙基乙胺(DIPEA), 室温搅拌过夜。将反应液依次经二氯甲烷萃取、饱和食盐水洗、无水硫酸钠干燥、浓缩, 柱层析分离[$V(\text{二氯甲烷}) : V(\text{乙酸乙酯}) = 3 : 2$]得到 331 mg 淡黄色固体 FRET-1, 产率 85%; 316 mg 淡黄色固体 FRET-2, 产率 82%。

探针 FRET-1: m.p. 184.2~185.8 °C; ¹H NMR (400 MHz, CDCl₃) δ: 8.08 (s, 1H), 7.88 (s, 1H), 7.66 (d, $J=7.2$ Hz, 1H), 7.29 (d, $J=9.2$ Hz, 1H), 7.21 (s, 2H), 7.10 (s, 2H), 6.83 (bs, 4H), 6.59 (d, $J=8.8$ Hz, 1H), 6.45 (s, 1H), 3.81~3.42 (m, 12H), 2.31 (bs, 6H), 1.21 (t, $J=6.8$ Hz, 6H); ¹³C NMR (101 MHz, CDCl₃) δ: 168.71, 167.62, 167.38, 164.18, 158.33, 156.57, 152.04, 151.20, 150.88, 142.93, 130.07, 129.11, 129.01, 125.49, 118.53, 115.83, 115.50, 110.40, 109.31, 107.03, 96.18, 81.26, 44.08, 20.73, 12.19. HRMS (ESI⁺) calcd for C₃₇H₃₂N₂O₅ 772.2506, found 772.2504。

探针 FRET-2: m.p. 181.4~183.2 °C; ¹H NMR (400 MHz, CDCl₃) δ: 8.05 (s, 1H), 7.94 (s, 1H), 7.23 (d, $J=8.0$ Hz, 1H), 7.33 (d, $J=8.8$ Hz, 1H), 7.24 (s, 1H), 7.11 (bs, 2H), 6.84 (bs, 4H), 6.67 (d, $J=8.0$ Hz, 1H), 6.53 (bs, 1H), 3.93~3.43 (m, 12H), 2.31 (s, 6H), 1.23 (t, $J=6.8$ Hz, 6H); ¹³C NMR (101 MHz, DMSO-d₃) δ: 168.78, 168.50, 168.07, 159.16, 157.35, 152.20, 151.43, 537.59, 134.20, 130.08, 128.84, 126.33, 124.73, 123.87, 117.91, 115.75, 110.53, 109.92, 108.18, 97.40, 81.78, 45.30, 21.11, 12.32. HRMS (ESI⁺) calcd for C₃₇H₃₂N₂O₅ 772.2506, found 772.2501。

3.2.3 光谱测试

探针 FRET-1/2 用 DMSO 配制成 2.5 mmol·L⁻¹ 的母液, 测试浓度为 2.5 μmol·L⁻¹。选择性测试所用各种干扰离子均为钠盐或钾盐, 测试浓度为 500 μmol·L⁻¹, 测试溶液为 Tris-HCl 缓冲溶液(10 mmol·L⁻¹, pH 7.4, 5%

DMF)。荧光光谱均在室温条件下测试, 样品池为 1 cm×1 cm×4 cm 石英比色皿, 激发波长为 420 nm, 激发和发射狭缝宽度分别为 2.5 nm 和 10 nm。

辅助材料(Supporting Information) 中间体**1, 2, 3, 4**的 ¹H NMR 图谱, 目标化合物 FRET-1/2 的 ¹H NMR, ¹³C NMR 和 HRMS 图谱。这些材料可以免费从本刊网站 (<http://sioc-journal.cn/>) 上下载。

References

- [1] (a) Rosca, V.; Koper, Marc T. M. *Electrochim. Acta* **2008**, *53*, 5199.
(b) Khaled, K. F. *Appl. Surf. Sci.* **2006**, *252*, 4120.
(c) Kean, T.; Miller, J. H. M.; Skellern, G. G.; Snodin, D. *Pharmeur. Sci. Notes* **2006**, *2006*, 23.
- [2] (a) Serov, A.; Kwak, C. *Appl. Catal., B* **2010**, *98*, 1.
(b) Garrod, S.; Bolland, M. E.; Nicholls A. W.; Connor, S. C.; Connelly, J.; Nicholson, J. K.; Holmes, E. *Chem. Res. Toxicol.* **2005**, *18*, 115.
- [3] U.S. Environmental Protection Agency (EPA) *Integrated Risk Information System (IRIS) on Hydrazine/Hydrazine Shlfate* National Center for Environmental Assessment, Office of Research and Development, Washington, DC, **1999**.
- [4] Lei, B. F.; Wei, C.-J.; Tu, S.-C. *J. Biol. Chem.* **2000**, *275*, 2520.
- [5] (a) Chen, X.; Wang, F.; Hyun, J. Y.; Wei, T.; Qiang, J.; Ren, X. *Chem. Soc. Rev.* **2016**, *45*, 2976.
(b) He, X.-P.; Hu, X.-L.; James, T. D.; Yoon, J.; Tian, H. *Chem. Soc. Rev.* **2017**, *46*, 6687.
(c) Wu, D.; Sedgwick, A. C.; Gunnlaugsson, T.; Akkaya, E. U.; Yoon, J.; James, T. D. *Chem. Soc. Rev.* **2017**, *46*, 7105.
(d) Sedgwick, A. C.; Wu, L.; Han, H.-H.; Bull, S. D.; He, X.-P.; James, T. D. *Chem. Soc. Rev.* **2018**, *47*, 8842.
- [6] Cui, L.; Ji, C. F.; Peng, Z. X.; Zhong, L.; Zhou, C. H.; Yan, L. L.; Qu, S.; Zhang, S. P.; Huang, C.; Qian, X. H.; Xu, Y. F. *Anal. Chem.* **2014**, *86*, 4611.
- [7] Cui, L.; Peng, Z. X.; Ji, C. F.; Huang, D. T.; Ma, J.; Zhang, S. P.; Qian, X. H.; Xu, Y. F. *Chem. Commun.* **2014**, *50*, 1485.
- [8] Qian, Y.; Lin, J.; Han, L. J.; Lin, L.; Zhu, H. L. *Biosens. Bioelectron.* **2014**, *58*, 282.
- [9] Zhang, J. J.; Ning, L. L.; Liu, J. T.; Wang, J. X.; Yu, B. F.; Liu, X. Y.; Yao, X. J.; Zhang, Z. P.; Zhang, H. X. *Anal. Chem.* **2015**, *87*, 9101.
- [10] Firoj, A.; Anila, H. A.; Andaraj, T.; Mogare, D. G.; Samit, C.; Amitava, D. *Chem. Commun.* **2016**, *52*, 6166.
- [11] Tang, T.; Chen, Y. Q.; Fu, B. S.; He, Z. Y.; Xiao, H.; Wu, F.; Wang, J. Q.; Wang, S. R.; Zhou, X. *Chin. Chem. Lett.* **2016**, *27*, 540.
- [12] Zhai, Q. S.; Feng, W. Y.; Feng, G. Q. *Anal. Methods* **2016**, *8*, 5832.
- [13] Chen, W.; Liu, W.; Liu, X. J.; Kuang, Y. Q.; Yu, R. Q.; Jiang, J. H. *Talanta* **2017**, *162*, 225.
- [14] Li, B.; He, Z. S.; Zhou, H.; Zhang, H. H.; Liu, G. H. *Dyes Pigm.* **2017**, *146*, 300.
- [15] Lu, Z. L.; Fan, W. L.; Shi, X. M.; Lu, Y. Y.; Fan, C. H. *Anal. Chem.* **2017**, *89*, 9918.
- [16] Ma, J. H.; Fan, J. L.; Li, H. D.; Yao, Q. C.; Xia, J.; Wang, J. Y.; Peng, X. J. *Dyes Pigm.* **2017**, *138*, 39.
- [17] Liu, C. T.; Wang, F.; Xiao, T.; Chi, B.; Wu, Y. H.; Zhu, D. R.; Chen, X. Q. *Sens. Actuator, B* **2018**, *256*, 55.
- [18] Wang, S.; Ma, S. Y.; Zhang, J. D.; Sheng, M. Y.; Liu, P.; Zhang, S. Y.; Li, J. L. *Sens. Actuator, B* **2018**, *261*, 418.
- [19] Fan, J. L.; Sun, W.; Hu, M. M.; Cao, J. F.; Cheng, G. H.; Dong, H. J.; Song, K. D.; Liu, Y. C.; Sun, S. G.; Peng, X. J. *Chem. Commun.* **2012**, *48*, 8117.
- [20] Hu, C.; Sun, W.; Cao, J. F.; Gao, P.; Wang, J. Y.; Fan, J. L.; Song,

- F. L.; Sun, S. G.; Peng, X. J. *Org. Lett.* **2013**, *15*, 4022.
- [21] Sun, Y.; Zhao, D.; Fan, S. W.; Duan, L. *Sens. Actuator, B* **2015**, *208*, 512.
- [22] Dai, X.; Wang, Z-Y.; Du, Z-F.; Miao, J-Y.; Zhao, B-X. *Sens. Actuator, B* **2016**, *232*, 369.
- [23] Xia, X. T.; Zeng, F.; Zhang, P. S.; Lyu, J.; Huang, Y.; Wu, S. Z. *Sens. Actuator, B* **2016**, *227*, 411.
- [24] Yang, X. P.; Liu, Y. X.; Wu, X. L.; Zhang, D.; Ye, Y. *Sens. Actuator, B* **2017**, *253*, 488.
- [25] Xu, H.; Gu, B. A.; Li, Y. Q.; Huang, Z.; Su, W.; Duan, X. L.; Yin, P.; Li, H. T.; Yao, S. Z. *Talanta* **2018**, *180*, 199.
- [26] Xiao, L. L.; Tu, J.; Sun, S. G.; Pei, Z. C.; Pei, T. X.; Pang, Y.; Xu, Y. Q. *RSC Adv.* **2014**, *4*, 41807.
- [27] Zhang, Y.; Liu, J. F.; Yi, R. H.; Ai, S. F.; Cheng, H. R.; Jia, W. Z. *Chin. J. Anal. Chem.* **2018**, *46*, 511 (in Chinese).
(张勇, 刘劲风, 益润豪, 艾思凡, 程焕仁, 贾文志, 分析化学, **2018**, *46*, 511.)
- [28] Ju, Z. Y.; Shu, P. H.; Xie, Z. Y.; Jiang, Y. Q.; Tao, W. J.; Xu, Z. H. *Chin. J. Org. Chem.* **2019**, *39*, 697 (in Chinese).
(鞠志宇, 舒朋华, 谢智宇, 蒋雨晴, 陶伟杰, 许志红, 有机化学, **2019**, *39*, 697.)
- [29] Zhai, Q. S.; Yang, S. J.; Fang, Y. L.; Zhang, H. Y.; Feng, G. Q. *RSC Adv.* **2015**, *5*, 94216.
- [30] Ding, S. S.; Zhang, Q.; Xue, S. H.; Feng, G. Q. *Analyst* **2015**, *140*, 4687.
- [31] Li, M. X.; Feng, W. Y.; Zhang, H. Y.; Feng, G. Q. *Sens. Actuator, B* **2017**, *243*, 51.
- [32] Feng, W. Y.; Hong, J. X.; Weiyong Feng, Feng, G. Q. *Sens. Actuator, B* **2017**, *251*, 389.
- [33] Feng, W. Y.; Bai, L. Y.; Jia, S. W.; Geng, G. Q. *Sens. Actuator, B* **2018**, *260*, 554.
- [34] Ma, C.; Wei, C.; Li, X. Y.; Zheng, X. Y.; Chen, B.; Wang, M.; Zhang, P. Z.; Li, X. L. *Dyes Pigm.* **2019**, *162*, 624.

(Li, L.; Fan, Y.)