

DOI:10.19431/j.cnki.1673-0062.2019.04.007

基于 Uranyl-Salophen-SDS 体系荧光光谱法检测铀

苏昌霖,廖力夫,酆志阳,王志梅,张迪,肖锡林*

(南华大学 化学化工学院,湖南 衡阳 421001)

摘要:铀是一种重要的自然资源,在多个领域都有广泛的用途,所以检测铀也越来越有意义。建立了一种操作简单,价格低廉,灵敏度高的检测方法,首先将 Salophen 与铀酰结合成 Uranyl-Salophen 配合物,接着采用十二烷基硫酸钠(SDS)表面活性剂将配合物包裹,从而达到增敏检测 U(VI)的目的。优化了时间、温度、SDS 剂量、pH 条件,在最优条件下荧光强度与铀的浓度范围在 0.005 ~ 3.5 mol/mL 下呈现良好的线性关系,在实际样品中检测铀的回收率在 96% ~ 103%。

关键词:铀酰;十二烷基硫酸钠;增敏;荧光强度

中图分类号:0433.4 **文献标志码:**A **文章编号:**1673-0062(2019)04-0067-07

Determination of Uranium by Fluorescence Spectrophotometry in Uranyl-salophen-SDS System

SU Changlin, LIAO Lifu, LI Zhiyang, WANG Zhimei, ZHANG Di, XIAO Xilin*

(School of Chemistry and Chemical Engineering, University of South China,
Hengyang, Hunan 421001, China)

Abstract: Uranium is an important natural resource and is widely used in many fields, so it is becoming more and more meaningful to detection of uranium. In this paper, a simple operation, low cost and high sensitivity detection of method was established. Firstly, the Uranyl-Salophen complex was formed by the combination of Salophe with uranyl. And then detect U(VI) effectively by adding sodium dodecyl sulfonate (SDS) to the above substances. It optimized the time, temperature, SDS concentration, pH condition. The fluorescence intensity and the range of uranium concentration showed a good linear relationship during 0.005 ~ 3.5 mol/mL under the optimal conditions. This method can be used in the detection of practical samples and the recovery rate was 96% ~ 103%.

收稿日期:2019-05-05

基金项目:国家自然科学基金项目(11475079)

作者简介:苏昌霖(1993-),女,硕士研究生,主要从事于环境与生化分析方面的研究。E-mail:542775860@qq.com。

* 通信作者:肖锡林(1978-),男,教授,博士,主要从事于环境与生化分析方面的研究。E-mail:xiaoxl2001@163.com

key words: uranyl; sodium dodecyl sulfate; sensibilization; fluorescence intensity

0 引言

铀是核能发展和原子能工业的重要原料^[1],铀在开发中产生的放射性废物对我们的生态环境以及资源可持续发展都构成了威胁^[2],而且铀一旦进入到人体或者动物内脏,会造成器官的损伤,引发各种各样疾病等^[3],所以检测铀也成为了大家所关注的目标。

荧光分析法由于它检测手段简便、选择性高、重现性好、线性范围广等诸多特点^[4-6],使它愈加广泛地运用到工农业、生命科学、材料化学、食品检测等等领域^[7]。尤其在微量元素的测定中,荧光光度法比分光光度法和比色法更加方便^[8],并且检验快速,价格实惠等,所以本文采用荧光光度法来检测铀。

Salophen 是有特殊结构和功能的一种物质,近年来对该类配合物的研究已由单齿小分子发展到大环配合物,应用范围也更加多元化。它可以与铀酰形成 Uranyl-Salophen 有色配合物^[9-10],能使体系发生荧光光谱变化,本文即是利用这种荧光变化来检测 U(VI)。但是单独的 Uranyl-Salophen 配合物的荧光还是较弱^[11],不能达到想要的效果,为增进 salophen 对 U(VI)的检测力度,一般会在此基础上再做研究,比如再结合荧光基团,或者将 Salophen 的结构制备成双环或大环来进一步增强荧光强度^[12-13]。本文所做的是在 Uranyl-Salophen 的基础上加一种价格实惠,性能优良,对环境污染小的表面活性剂——十二烷基磺酸钠(sodium dodecyl sulfate, SDS)来检测铀酰离子。这种制备方法更加简单,实验条件更好控制,效果更加明显。

表面活性剂在不同学科中都有很大的作用,在我们的化学领域中也是用途广泛,例如表面活性剂已经广泛用于光化学分析、电化学分析、色谱法分析等^[14-16]。在这些分析方法中表面活性剂的主要起增敏作用^[17-18]、增溶作用^[19-20]、增稳作用^[21]、催化作用^[22-23]和抗干扰作用^[24]等,因为表面活性剂的分子结构中有固定的亲水和亲油基团,在溶液表面有序排列,当溶液浓度到达一定浓度时,疏水部彼此吸引,缔和在一起,即形成了胶束,Uranyl-Salophen 属于疏水物质,也就自然而然被胶束内部的疏水物质包裹(如下图1),基于 SDS 的增溶和抗干扰的作用,对荧光强度产生了增敏的作用。

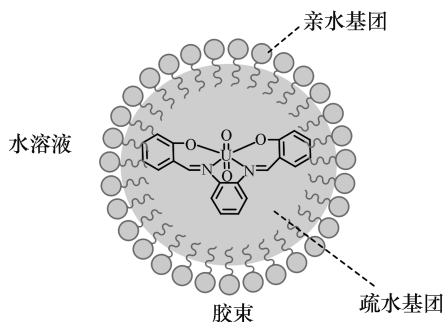


图1 Uranyl-salophen 分子在 SDS 胶束溶液中

Fig. 1 Uranyl-salophen molecule in SDS micelle solution

1 实验部分

1.1 实验仪器和试剂

六水合硝酸铀酰,水杨醛,邻苯二胺,十二烷基磺酸钠,乙醇,硝酸等均为分析纯级别;Hitachi F-4500 荧光光谱仪(日本日立公司),DZF-6020 真空干燥箱(上海三发科学仪器有限公司)。

1.2 合成步骤

根据文献^[11]将 1.20 mmol 水杨醛置于 250 mL 三口烧瓶中(冰水浴),另外称取 10 mmol 邻苯二胺,用无水乙醇溶解,转入 125 mL 分液漏斗中,逐滴地加入三口烧瓶中,待全部滴加完后,将 10 mmol 六水硝酸铀酰加入到三口烧瓶中,冰水浴下反应 1 h,生成橙黄色固体,配合物制备完成。反应结束后抽滤,接着用无水甲醇 40 °C 下重结晶,抽滤,然后在真空干燥箱干燥 2 h,反应过程见图 2。称取适量上述配位化合物,滴加 2~3 滴 HNO₃ 促溶,然后加 100 mL 蒸馏水,超声 30 min,配制成 10 nmol/mL 浓度的溶液,备用。

室温下,称取 0.002 mol 十二烷基磺酸钠(SDS)溶解于 100 mL 蒸馏水中,备用。

1.3 铀酰的荧光检测

室温下,在 10 mL 比色管中加入 1 mL 一定浓度的 Uranyl-salophen 标准溶液,再加入 1 mL MES 缓冲液(pH = 6.1)和 1 mL 二乙烯三胺五乙酸(DTPA)掩蔽剂,然后再倒入 4 mL 表面活性剂,最后加水至 10 mL,摇匀,反应 20 min,测定其荧光强度。

2 结果与讨论

2.1 salophen 的核磁共振氢谱图

对配体 salophen 进行核磁共振氢谱

(300 MHz, DMSO) 进行扫描, 结果如图 3 所示, 其中 $\delta = 11.1$ (s, 2H, O—H), $\delta = 8.88$ (s, 2H, N=C—H), $\delta = 6.93 \sim 7.65$ (m, 12H, Ar—H), 根据各峰的化学位移和归属, 推断所得产物为 salophen。

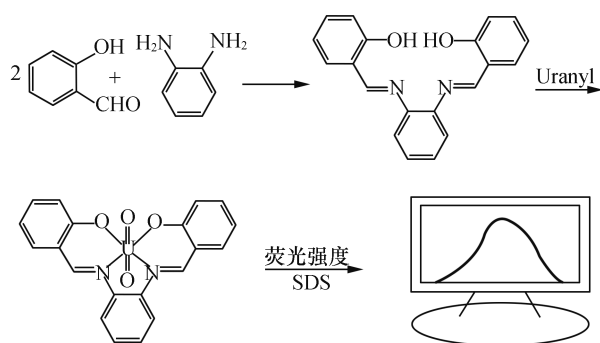


图2 合成 Uranyl-salophen 以及测量铀(VI)的流程示意图

Fig.2 Illustrated procedures of the condensation product of ligand uranyl-salophen, measuring uranium (VI) by fluorescence method

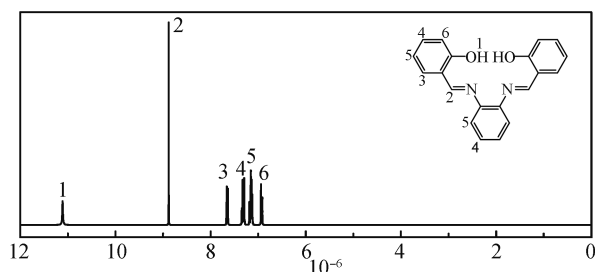


图3 MFHC 的核磁共振氢谱图

Fig.3 ^1H NMR spectrum of salophen

2.2 salophen 的元素分析

salophen 的元素分析见表 1。

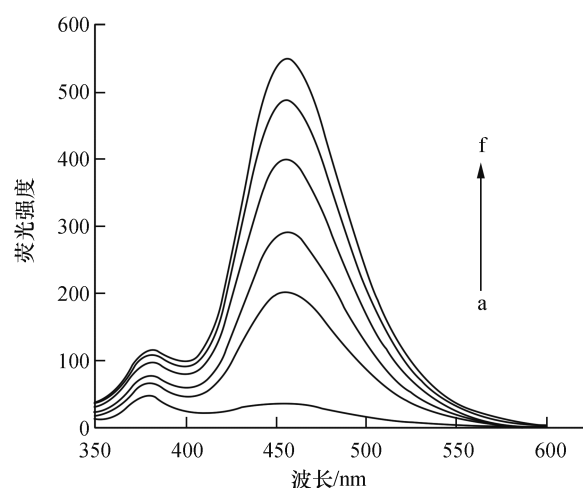
表1 salophen 的元素

Table 1 Elemental analysis of salophen %				
salophen	C	H	O	N
理论值	75.95	5.06	10.13	8.86
实际值	75.83	5.09	10.38	8.72

2.3 在表面活性剂下的荧光光谱

如图 4 为不同浓度的 uranyl-salophen 在表面活性剂的作用下的发射荧光光谱图。由图 4 可知, 单独的铀酰离子, 表面活性剂以及 salophen 荧光强度很弱, 铀酰与 salophen 结合之后, 荧光强度略有增强, 但效果仍然不是很明显 (图 4 中未给

出), 在此基础上加上表面活性剂 SDS, 荧光强度明显增强。在一定范围内, 荧光强度随着铀酰离子浓度增加而增大, 也进一步验证了 Uranyl-salophen—SDS 体系可作为对 U(VI) 的检测手段, 实验证明体系的最大激发波长和最大发射波长分别位于 329 nm 和 455 nm。体系荧光增强的具体原因如下: 1) 减少了分子之间的碰撞而引起的淬灭, 以及能量转移等; 2) 限制了荧光试剂在界面区域的流动; 3) 铀酰离子配位到 Salophen 的两个空腔后, 铀酰离子可能还会配位溶液中的水分子, 加入具有亲水基和疏水基的表面活性剂后, 将排斥配合物内层或周围的水, 改善了络合物的微环境^[25-26]。



a—0.0 nmol/mL; b—1 nmol/mL; c—1.5 nmol/mL;
d—2 nmol/mL; e—2.5 nmol/mL; f—3 nmol/mL。

图4 Uranyl-salophen 与 SDS 体系的荧光发射光谱图

Fig.4 Fluorescence emission spectra of uranyl-salophen and SDS system

2.4 Uranyl-salophen 与 SDS 体系的检测条件优化

2.4.1 溶液酸度选择

实验考察了 pH 对体系的荧光强度的影响, 对 2-(N-吗啉代) 乙磺酸 (MES)、HAc-NaAc、Tris-HCl 缓冲液在 pH = 4 ~ 9 范围内进行探究。结果表明, 溶液在 pH 为 5.5 ~ 6.5 期间荧光强度较强, 本实验选择 pH = 6.1 作为反应溶液的酸度 (MES 缓冲液为反应介质)。如图 5, 在酸性条件下配合物的配位能力较强, SDS 也能较好的增溶配合物, 使荧光强度增大。

2.4.2 SDS 溶液剂量的选择

由图 6 可以看出, 在铀的浓度和溶液 pH 一定时, 荧光强度也取决于 SDS 的剂量, 本文加入

前面配制好的一定浓度的 SDS 溶液 ($0 \sim 4 \times 10^{-5} \text{ mol/mL}$) 进行研究, 当 SDS 的体积较低时, 荧光强度也较低, 这可能是 SDS 的浓度较低, 未能定量地将 Uranyl-salophen 包在胶束其中所致, 随着 SDS 体积的不断增长, 说明形成的胶束数量也增多, 荧光的强度的也在增大, 在达到 $2 \times 10^{-5} \text{ mol/mL}$ 后, 几乎保持稳定, 所以本文选择 $2 \times 10^{-5} \text{ mol/mL}$ 的 SDS 作为研究, 即 Uranyl-salophen: SDS 的物质的量的比为 1 : 2 666。

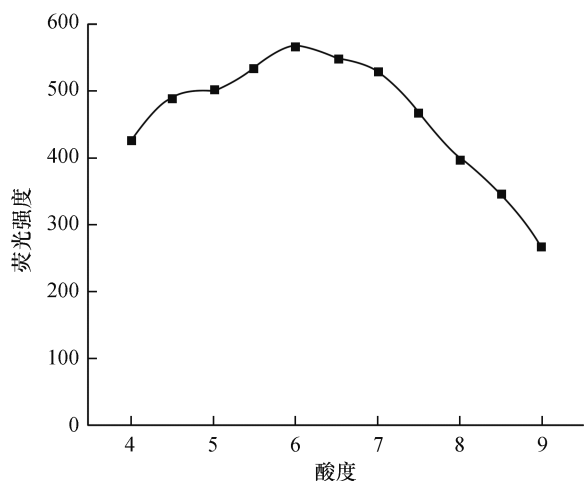


图5 溶液酸度的影响

Fig. 5 Effect of solution acidity

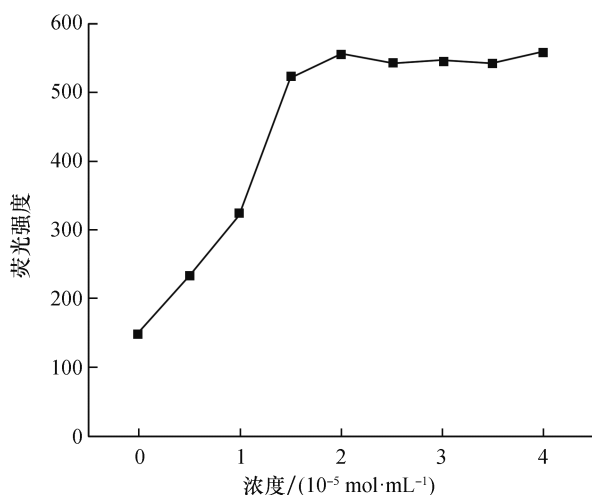


图6 SDS浓度的影响

Fig. 6 Effect of SDS volume

2.4.3 反应温度的选择

实验的反应温度对结果也有较大的影响, 所以本文也对温度进行考察, 结果如图 7 所示。在 $10^\circ\text{C} \sim 25^\circ\text{C}$ 内, 荧光强度也随之增长, 在大于 25°C 后, 随温度增加时, 配位的体系解离相应增

加, 荧光强度下降, 本实验选择 25°C 进行反应。

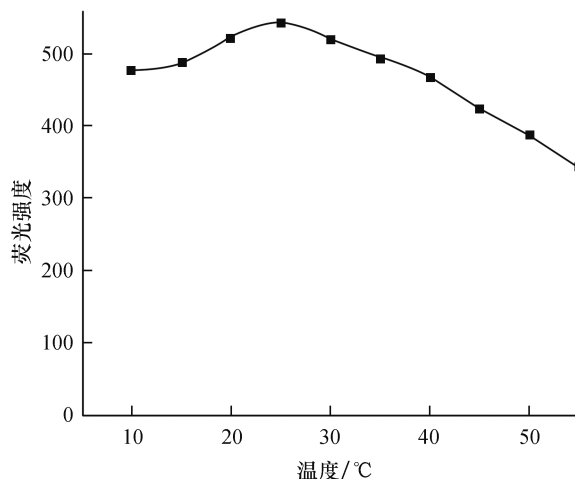


图7 温度的影响

Fig. 7 Effect of Temperature

2.4.4 反应时间的选择

考察反应时间对荧光强度的影响, 结果显示时间的变化对实验没有太大的影响, 表明 Uranyl-salophen—SDS 体系很快就达到稳定状态, 所以也具有良好的荧光稳定性, 如图 8。本文选择的时间为 20 min。

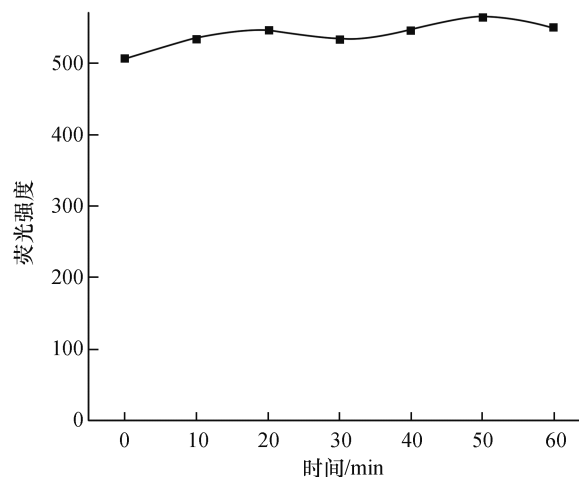


图8 反应时间的影响

Fig. 8 Effect of reaction time

2.4.5 标准曲线、检出限和精密度

在前面所探究的最优实验条件下, 用不同浓度的铀酰离子对铀(VI)的检测进行校正, 如图 9, 铀(VI)浓度在 $0.005 \sim 3.5 \text{ nmol/mL}$ 范围内与荧光强度具有良好的线性关系, 线性方程为 $Y = 99.32 + 167.33c (\text{mol/mL})$, $r = 0.9998$ 。空白溶液

重复测 11 次,以 3 倍标准偏差来计算,检出限为 0.003 nmol/mL。再对铀酰浓度为 0.3 nmol/mL 和 1.5 nmol/mL 待测液进行 6 次平行测定,相对标准偏差为 1.8% 和 2.3%,说明该检测手段对 U(VI)的测定有良好的精密度。

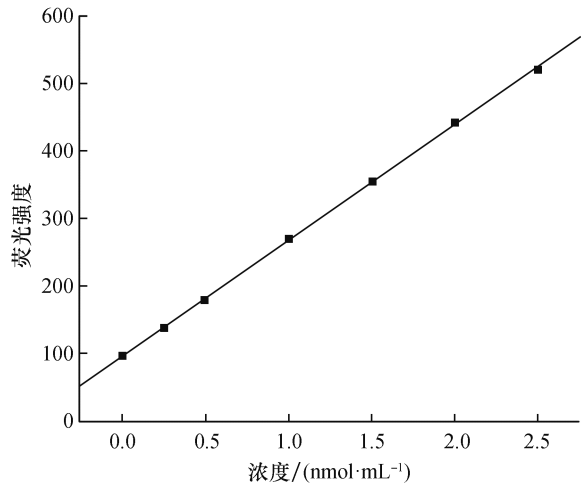


图 9 标准曲线
Fig.9 The calibration

2.4.6 共存离子的测定

在铀的溶液中一些共存的其他离子会影响铀(VI)的测定,通过在 3 nmol/mL 铀(VI)溶液中分别加入高浓度的共存离子,在 $\pm 5\%$ 时误差范围内对铀的测定没有影响。如表 2 所示,即使大于 500 倍的 SO_4^{2-} 、 NO_3^+ 、 CH_3COO^- 等离子对实验也

未造成干扰,加入掩蔽剂后,体系中别的金属离子的容许量明显增加,经实验验证,15 倍的 Mg^{2+} 、 Fe^{3+} 、 Ca^{2+} 、 La^{3+} 、 Mn^{2+} 、 Cu^{2+} 、 Pb^{2+} 对测定没有影响,以上也说明该方法适合于检测铀(VI)酰离子。

表 2 共存离子对测量 3 nmol/mL 铀的影响
Table 2 Influence of coexisting ions to the determination of 3 nmol/mL uranium

共存离子	浓度/(nmol · mL ⁻¹)	相对误差
SO ₄ ²⁻	1500	+0.5
NO ₃ ⁺	1500	+0.8
CH ₃ COO ⁻	1500	-1.1
Na ⁺	1 500	+0.3
Cl ⁻	1 500	-0.9
Mg ²⁺	45	+1.2
Fe ³⁺	45	+0.6
Ca ²⁺	45	-1.8
La ³⁺	45	-2.1
Mn ²⁺	45	+1.4
Cu ²⁺	45	+0.8
Pb ²⁺	45	-1.5

2.4.7 含铀环境水样的分析

为了验证这种方法的可实用性,本实验分别对四种铀污染的水源进行检测,并且做了加标回收实验,结果见表 3。结果表明此方法对实际样品中铀的检测和回收有良好的效果。

表 3 含铀水样的分析结果($n=6$)
Table 3 Analytical results of uranium(VI) in water samples($n=6$)

样品	本底值 /(nmol · mL ⁻¹)	RSD/%	加入量 /(nmol · mL ⁻¹)	加标后测定值 /(nmol · mL ⁻¹)	平均回收率/%
A	0.78	2.12	1.0	1.81	103
B	0.86	3.04	1.0	1.83	97
C	1.02	2.96	1.0	2.04	102
D	0.90	2.65	1.0	1.86	96

3 结 论

检测铀的手段多种多样,本实验是将 Salophen 与 UO_2^{2+} 结合成相对稳定的配合物,利用此配合物荧光的变化来检测 U(VI),为了效果更加明显,我们在此基础上再加入毒性小,污染少,价格低廉,性能多样的 SDS,表面活性剂的胶束溶液包裹被测物,利用它的增溶,抗干扰等作用来达

到增敏荧光强度的效果进而更直观、更清晰、更准确地检测和分析铀,具有操作简单,选择性好,灵敏度高,现象明显等优点。而且实际样品分析的检出限较低,根据本实验应用的反应原理,我们也可以更深入的对其他物质进行检测。

参考文献:

[1] LIU W,DAI X,BAI Z,et al. Highly sensitive and selective

- uranium detection in natural water systems using a luminescent mesoporous metal-organic framework equipped with abundant lewis basic sites; a combined batch, X-ray absorption spectroscopy, and first principles simulation investigation [J]. *Environmental science & technology*, 2017, 51(7):3911-3921.
- [2] ARNOLD T, BAUMANN N, KRAWCZYK-BÄRSCH E, et al. Identification of the uranium speciation in an underground acid mine drainage environment [J]. *Geochimica et cosmochimica acta*, 2011, 75(8):2200-2212.
- [3] RAO Y B, RAMANA B V V, RAGHAVAN P G, et al. Determination of uranium in process stream solutions from uranium extraction plant employing energy dispersive X-ray fluorescence spectrometry [J]. *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*, 2012, 294(3):371-376.
- [4] LAGOS M, PAREDES R, RETAMAL C. High precision energy measurements from the analysis of wide spectral features. Application to the fluorescence of YAG: Ce³⁺ [J]. *Journal of photochemistry and photobiology a chemistry*, 2017, 344(1):163-167.
- [5] DUEDE K O, FRENCH C E. Two-colour fluorescence fluorimetric analysis for direct quantification of bacteria and its application in monitoring bacterial growth in cellulose degradation systems [J]. *Journal of microbiological methods*, 2017, 135:85-92.
- [6] SONG C, YANG X, WANG K, et al. Application of polymers in fluorescence analysis [J]. *Chemical journal of Chinese universities*, 2016, 37(2):201-212.
- [7] IBÁÑEZ G A, ESCANDAR G M. Fluorescence and Phosphorescence Chemical sensors applied to water samples [J]. *Smart sensors for real-time water quality monitoring*, 2013, 4:45-64.
- [8] MAJI S, VISWANATHAN K S. Sensitization of uranium fluorescence using 2,6-pyridinedicarboxylic acid: Application for the determination of uranium in the presence of lanthanides [J]. *Journal of luminescence*, 2009, 129(11):1242-1248.
- [9] XING S, LIFU L, LIN C, et al. Spectroscopic study on the reactions of bis-salophen with uranyl and then with fructose 1,6-bisphosphate and the analytical application [J]. *Spectrochimica acta part A molecular and biomolecular spectroscopy*, 2014, 123(7):110-116.
- [10] 肖锡林, 许丽, 王娇, 等. 新型双极双齿配体的合成及其与铀酰离子相互作用的共振光散射 [J]. *南华大学学报(自然科学版)*, 2017, 31(2):79-81.
- [11] ZHANG G, LIAO L, LIN Y, et al. Determination of fructose 1,6-bisphosphate using a double-receptor sandwich type fluorescence sensing method based on uranyl-salophen complexes [J]. *Analytica chimica acta*, 2013, 784:47-52.
- [12] CHEN L, LIAO L, SHEN X, et al. A resonance light scattering method for the determination of uranium based on a water-soluble salophen and oxalate [J]. *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*, 2014, 301(3):863-869.
- [13] HE Y, LIAO L, XU C, et al. Determination of ATP by resonance light scattering using a binuclear uranyl complex and aptamer modified gold nanoparticles as optical probes [J]. *Microchimica acta*, 2014, 182(1/2):419-426.
- [14] MADRAKIAN T, AFKHAMI A, MOUSAVI A. Spectrophotometric determination of trace amounts of uranium (VI) in water samples after mixed micelle-mediated extraction [J]. *Talanta*, 2007, 71(2):610-614.
- [15] ZHANG S, GENG J, YANG W, et al. Surfactant-sensitized ratiometric fluorescent chemodosimeter for the highly selective detection of mercury(II) ions based on vinyl ether oxymercuration [J]. *Rsc advances*, 2014, 4(24):12596-12600.
- [16] RAZA Z A, REHMAN A, HUSSAIN M T, et al. Production of rhamnolipid surfactant and its application in bio-scouring of cotton fabric [J]. *Carbohydr research*, 2014, 391(1):97-105.
- [17] WANG H, MAO J, CHANGLI L I, et al. Effects of ionic liquids on fluorescence properties of 4-t-octylphenol in the presence of surfactant or β -cyclodextrin [J]. *Journal of luminescence*, 2014, 149:45-53.
- [18] AMARJARGAL A, TIJING L D, SHON H K, et al. Facile in situ growth of highly monodispersed Ag nanoparticles on electrospun PU nanofiber membranes: Flexible and high efficiency substrates for surface enhanced Raman scattering [J]. *Applied surface science*, 2014, 308(3):396-401.
- [19] NATARAJAN V, PORWAL N K, GODBOLE S V. Determination of uranium and thorium in zircon by energy dispersive X-ray fluorescence technique [J]. 2012, 19(6):399-402.
- [20] ZHENG F, GAO B, SUN Y Y, et al. Removal of tetrachloroethylene from homogeneous and heterogeneous porous media: Combined effects of surfactant solubilization and oxidant degradation [J]. *Chemical engineering journal*, 2016, 283:595-603.
- [21] GALINDO-ALVAREZ J, LE K A, SADTLER V, et al. Enhanced stability of nanoemulsions using mixtures of non-ionic surfactant and amphiphilic polyelectrolyte [J]. *Colloids and surfaces a physicochemical and engineering aspects*, 2011, 389(1):237-245.

- oxygen-rich conditions [J]. *Journal of catalysis*, 2005, 229(2):480-489.
- [10] JIN S, DONG G, LUO J, et al. Improved photocatalytic NO removal activity of SrTiO₃ by using SrCO₃ as a new co-catalyst [J]. *Applied catalysis B environmental*, 2018, 227:24-34.
- [11] YAMASHITA Y, AOYAMA N, TAKEZAWA N, et al. Characterization of highly active AgCl/Al₂O₃ catalyst for photocatalytic conversion of NO [J]. *Catalysis letters*, 2009, 132(3/4):438.
- [12] SUN Y, ZHAO Z, DONG F, et al. Mechanism of visible light photocatalytic NO_x oxidation with plasmonic Bi co-catalyst-enhanced (BiO)₂CO₃ hierarchical microspheres [J]. *Physical chemistry chemical physics*, 2015, 17(4/5/6):456.
- [13] XU W, HE H, YU Y. Deactivation of a Ce/TiO₂ Catalyst by SO₂ in the Selective Catalytic Reduction of NO by NH₃ [J]. *Journal of physical chemistry C*, 2009, 113(11):4426-4432.
- [14] ROY P, BERGER S, SCHMUKI P. TiO₂ nanotubes: synthesis and applications [J]. *Angewandte chemie international edition*, 2011, 50(13):2904-2939.
- [15] YAP P S, LIM T T, LIM M, et al. Synthesis and characterization of nitrogen-doped TiO₂/AC composite for the adsorption-photocatalytic degradation of aqueous bisphenol-A using solar light [J]. *Catalysis today*, 2010, 151(1/2):8-13.
- [16] XIANG L, ZHAO X, SHANG C, et al. Au or Ag nanoparticle-decorated 3D urchin-like TiO₂ nanostructures: Synthesis, characterization, and enhanced photocatalytic activity [J]. *Journal of colloid and interface science*, 2013, 403:22-28.
- [17] XU L, ZANG H, ZHANG Q, et al. Photocatalytic degradation of atrazine by H₃PW₁₂O₄₀/Ag-TiO₂: Kinetics, mechanism and degradation pathways [J]. *Chemical engineering journal*, 2013, 232(10):174-182.
- [18] WANG D, LI Y, LI P G, et al. Mechanism and experimental study on the photocatalytic performance of Ag/AgCl@chiral TiO₂ nanofibers photocatalyst: the impact of wastewater components [J]. *Journal of hazardous materials*, 2015, 285:277-284.
- (责任编辑:周泉)
-
- (上接第72页)
- [22] BILLAMBOZ M, MANGIN F, DRILLAUD N, et al. Micellar catalysis using a photochromic surfactant: application to the Pd-catalyzed Tsuji-Trost reaction in water [J]. *Journal of organic chemistry*, 2014, 79(2):493-500.
- [23] QUINSON J, INABA M, NEUMANN S, et al. Investigating particle size effects in catalysis by applying a size-controlled and surfactant-free synthesis of colloidal nanoparticles in alkaline ethylene glycol: case study of the oxygen reduction reaction on Pt [J]. *ACS catalysis*, 2018, 8(7):6627-6635.
- [24] 徐金超, 韩修廷, 李俊亮, 等. 三元复合驱无间隙自适应防卡泵的研制与应用 [J]. *石油钻采工艺*, 35(4):106-107;110.
- [25] EL-KOSASY A M, HUSSEIN L A, SEDKI N G, et al. Micelle enhanced and native spectrofluorimetric methods for determination of sertindole using sodium dodecyl sulfate as sensitizing agent [J]. *Spectrochimica acta part A: molecular and biomolecular spectroscopy*, 2016, 153:422-427.
- [26] PARASHCHENKO I I, SMIRNOVA T D, SHTYKOV S N, et al. Doxycycline-sensitized solid-phase fluorescence of europium on silica in the presence of surfactants [J]. *Journal of Analytical Chemistry*, 2013, 68(2):112-116.
- (责任编辑:扶文静)