

# 石墨烯修饰电极电化学发光分析法测定甲巯咪唑

熊海涛<sup>1,2\*</sup>, 吴迎春<sup>1,2</sup>, 唐志华<sup>2</sup>, 庞海霞<sup>1,2</sup>

(1. 陕西理工大学 陕西省催化基础与应用重点实验室, 陕西 汉中 723001; 2. 陕西理工大学  
化学与环境科学学院 陕西 汉中 723001)

**摘要:** 基于碱性介质中鲁米诺在石墨烯修饰玻璃碳电极(GCE)表面的弱电化学发光信号可被少量甲巯咪唑显著增敏的原理建立了一种灵敏测定甲巯咪唑的电化学发光新方法。实验考察了反应介质、石墨烯用量、鲁米诺浓度及电化学扫描速率对体系电化学发光信号的影响。结果发现: 在8.0  $\mu\text{L}$ 的石墨烯用量、0.01  $\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$  NaOH、0.7  $\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 鲁米诺及100  $\text{mV/s}$ 的扫描速率的优化条件下, 甲巯咪唑浓度在 $6.0 \times 10^{-8} \sim 1.0 \times 10^{-5} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 范围内与其增敏的电化学发光强度呈良好的线性关系, 检出限为 $2.0 \times 10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ , 其相对标准偏差(RSD)为3.5% ( $c = 0.5 \mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ ,  $n = 11$ )。该方法可用于甲巯咪唑含量的临床测定, 结果较为满意。

**关键词:** 石墨烯; 修饰玻璃碳电极; 电化学发光; 鲁米诺; 甲巯咪唑

**中图分类号:** O657.1 **文献标识码:** A **文章编号:** 1004-4957(2019)01-0117-05

## Electrochemiluminescence Detection of Methimazole Based on Graphene Modified Electrode

XIONG Hai-tao<sup>1,2\*</sup>, WU Ying-chun<sup>1,2</sup>, TANG Zhi-hua<sup>2</sup>, PANG Hai-xia<sup>1,2</sup>

(1. Shaanxi Key Laboratory of Catalysis, Shaanxi University of Technology, Hanzhong 723001, China; 2. School of Chemical & Environmental Sciences, Shaanxi University of Technology, Hanzhong 723001, China)

**Abstract:** A novel electrochemiluminescence (ECL) method was developed for the sensitive detection of methimazole based on the fact that in the alkaline medium, the weak ECL signal of luminol could be significantly enhanced by a little amount of methimazole on the surface of graphene modified glass carbon electrode. The effects of reaction medium, graphene dosage, luminol concentration and electrochemical scanning rates on ECL signal of the selected system were investigated. Results showed that under the optimal conditions of 8.0  $\mu\text{L}$  of graphene amount, 0.01  $\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$  of sodium hydroxide, 0.7  $\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$  of luminol and 100  $\text{mV/s}$  of electrochemical scanning rate, the increased ECL intensity for methimazole was linear in the concentration range of  $6.0 \times 10^{-8} - 1.0 \times 10^{-5} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  with a detection limit of  $2.0 \times 10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  and a relative standard deviation (RSD) of 3.5% ( $c = 0.5 \mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ ,  $n = 11$ ). The proposed method could be applied in the clinical analysis of methimazole tablets with satisfactory results.

**Key words:** graphene; modified glass carbon electrode; electrochemiluminescence; luminol; methimazole

甲巯咪唑(Methimazole), 又称他巴唑, 临床上常用于治疗甲状腺机能亢进症, 主要通过抑制甲状腺内过氧化物酶活性<sup>[1]</sup>阻碍吸聚到甲状腺内碘化物的氧化及酪氨酸的偶联, 进而阻止甲状腺素( $T_4$ )和三碘甲状腺原氨酸( $T_3$ )的合成而达到治疗作用。过量服用可引起肾炎、皮肤过敏、消化道不适、咽喉发烧及肝胆损伤等毒副作用<sup>[2]</sup>。因此, 建立一种快速、灵敏且准确测定甲巯咪唑含量的分析方法具有潜在的应用价值。目前, 国内外常用于甲巯咪唑检测分析的方法有紫外-可见分光光度法<sup>[3-5]</sup>、高效液相色谱法<sup>[6-8]</sup>、荧光光度法<sup>[9-10]</sup>、电化学分析法<sup>[1,11-13]</sup>及流动注射化学发光法<sup>[14-15]</sup>等, 但这些方法大多存在灵敏度较低、仪器昂贵、受散射光影响或试剂消耗量大等不足。此外, 也有少量利用电化学

收稿日期: 2018-05-17; 修回日期: 2018-07-20

基金项目: 陕西省教育厅专项科研项目(16JK1131, 17JK0151)

\* 通讯作者: 熊海涛, 博士, 副教授, 研究方向: 光谱及电分析化学, E-mail: xionght@snut.edu.cn

发光分析法测定甲巯咪唑的文献报道<sup>[16-17]</sup>，然而文献[16]使用的电化学发光探针制备十分繁琐，而文献[17]采用流动注射进样技术易造成试剂浪费。

电化学发光(Electrochemiluminescence, ECL)，又称电致化学发光，是通过电解使电极表面新产生的组分之间或该新组分与电解液中某种组分相互反应后而产生的一种光辐射现象<sup>[18-19]</sup>。通过检测体系发光信号来对目标物进行定量分析的技术称为电化学发光分析法，已被广泛应用于临床药物的检测分析<sup>[20-21]</sup>。近年来，碳族纳米材料因具有较高的机械强度、较大的比表面积、快速的电子传递特性及良好的生物相容性等<sup>[22-23]</sup>而倍受分析化学家的青睐。与碳量子点相比，碳纳米管与石墨烯均具有良好的电催化性能。但石墨烯可在普通实验室轻易制备成功，无需复杂的酸化处理过程，且毒性较低。因此，石墨烯已被作为一种理想的碳族材料来构建电化学发光传感界面，以实现对小分子<sup>[24-25]</sup>及生物大分子<sup>[26-27]</sup>的高灵敏检测。

本文基于甲巯咪唑能强烈增敏鲁米诺在石墨烯修饰玻碳电极(碱性介质中)表面的电化学发光建立了一种直接测定甲巯咪唑含量的电化学发光新方法。该方法分析速度快且具有较高的灵敏度，有望应用于甲巯咪唑的临床检测。

## 1 实验部分

### 1.1 仪器与试剂

IFFM-E型流动注射化学发光分析仪、IFFS-A型多功能化学发光检测器(西安瑞迈分析仪器有限公司); SB25-12DTD超声波清洗机(宁波新芝生物科技股份有限公司); CHI600D电化学工作站(上海辰华仪器有限公司)，实验采用三电极系统：以石墨烯修饰电极(Graphene/GCE)为工作电极，Pt丝电极为辅助电极，Ag/AgCl电极为参比电极(饱和KCl溶液)。

甲巯咪唑(MTZ，纯度>99%，中国药品生物制品检定所)；甲巯咪唑片(含量>98%，北京市燕京药业有限公司)；无水乙醇(天津市天力化学试剂有限公司)；硼砂、氯化钾(西安聚信化工有限公司)；铁氰化钾(郑州瑞尔化工产品有限公司)；亚铁氰化钾(上海鼓臣生物技术有限公司)；N,N-二甲基甲酰胺(DMF，上海阿拉丁生化科技股份有限公司)； $1.0\text{ mg}\cdot\text{mL}^{-1}$ 石墨烯(用DMF溶解)。实验用水为超纯水，所用试剂均为分析纯。

$0.01\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 甲巯咪唑储备液：准确称取 $0.1142\text{ g}$ 的甲巯咪唑标准品，用少量(约 $20\text{ mL}$ )无水乙醇溶解，再用高纯水洗涤烧杯及玻璃棒并定容至 $100\text{ mL}$ 容量瓶中，摇匀备用； $10\text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 鲁米诺(Luminol)储备液：准确称取 $0.1772\text{ g}$ 鲁米诺，然后用 $0.01\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ NaOH溶液溶解并定容至 $100\text{ mL}$ 棕色容量瓶中，避光备用。

电化学分析探针： $0.1\text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$  KCl +  $5.0\text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$   $\text{K}_3[\text{Fe}(\text{CN})_6]$  +  $5.0\text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$   $\text{K}_4[\text{Fe}(\text{CN})_6]\cdot 3\text{H}_2\text{O}$ 。

### 1.2 石墨烯修饰电极(Graphene/GCE)的制备

将裸玻碳电极在麂皮上用抛光粉( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )打磨成镜面，然后用水洗净。依次用无水乙醇和超纯水超声清洗 $5\text{ min}$ ，晾干备用。取 $8.0\text{ }\mu\text{L}$ 经充分超声分散的石墨烯( $1.0\text{ mg}\cdot\text{mL}^{-1}$ )滴涂于预处理好的玻碳电极表面，室温下晾置 $3\text{ h}$ ，待用。

### 1.3 实验方法

取 $3.0\text{ mL}$ 含有 $2.0\times 10^{-6}\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 鲁米诺的NaOH( $0.01\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ )作电解液，采用三电极系统，在 $0.15\sim 0.95\text{ V}$ 范围内进行循环伏安(CV)扫描，同时记录CV曲线与电化学发光信号( $I_0$ )。随后，在上述溶液中加入少量标准系列甲巯咪唑溶液，同时进行扫描并记录相应的CV曲线及电化学发光信号( $I_1$ )，以相对电化学发光信号( $\Delta I = I_1 - I_0$ )进行样品的定量分析。

## 2 结果与讨论

### 2.1 石墨烯修饰电极的表征

以 $\text{K}_3[\text{Fe}(\text{CN})_6]/\text{K}_4[\text{Fe}(\text{CN})_6]$ 为电化学探针，依次将裸玻碳电极和石墨烯修饰电极在 $-0.2\sim 0.6\text{ V}$ 电位范围内进行循环伏安扫描，考察了石墨烯修饰电极的电化学特性。结果表明：在裸GCE上，

其氧化峰电流为  $281 \mu\text{A}$ , 而在 Graphene/GCE 上, 氧化峰的峰电流增高至  $587 \mu\text{A}$  (图 1)。这说明修饰在 GCE 表面的石墨烯增大了其比表面积并有效地提高了电极的电子传递能力。

## 2.2 鲁米诺在裸 GCE 及 Graphene/GCE 上的电化学行为及电化学发光响应

在  $0.15 \sim 0.95 \text{ V}$  电位范围内, 分别记录了加入少量 MTZ 前后裸 GCE 及 Graphene/GCE 在碱性鲁米诺溶液中的电化学行为及电化学发光响应。结果表明: 溶液中未加入 MTZ 时, 裸 GCE (图 2A 曲线 a) 与 Graphene/GCE (图 2A 曲线 c) 均呈现较弱的伏安响应, 其在  $0.72 \text{ V}$  左右相应的电化学发光信号分别为 168 (图 2B 曲线 a)、347 (图 2B 曲线 c); 而当加入一定量 MTZ 后, 裸 GCE (图 2A 曲线 b) 与 Graphene/GCE (图 2A 曲线 d) 在  $0.72 \text{ V}$  电位处的氧化电流均明显增大, 其相应的电化学发光信号分别升至 442 (图 2B 曲线 b) 和 1 205 (图 2B 曲线 d), 此时, 裸 GCE 与 Graphene/GCE 的电化学发光信噪比分别为 2.63、3.47。由此可见, MTZ 在 Graphene/GCE 表面更易被氧化并增敏鲁米诺的电化学发光信号。这可能是由于 MTZ 分子中的巯基在  $0.72 \text{ V}$  附近被氧化并增敏了鲁米诺的氧化电流, 伴随着更强电化学发光信号的产生。

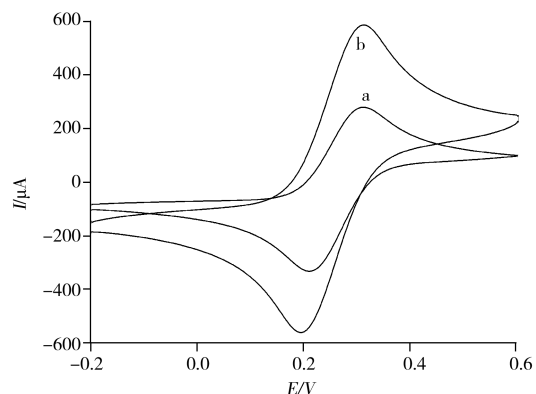


图 1 裸 GCE (a) 和 Graphene/GCE (b) 的循环伏安图  
Fig. 1 Cyclic voltammograms at the bare GCE (a) and graphene modified GCE (b)

electrolyte:  $5.0 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1} \text{K}_3[\text{Fe}(\text{CN})_6]/\text{K}_4[\text{Fe}(\text{CN})_6] + 0.1 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1} \text{KCl}$ ; scanning rate:  $100 \text{ mV/s}$

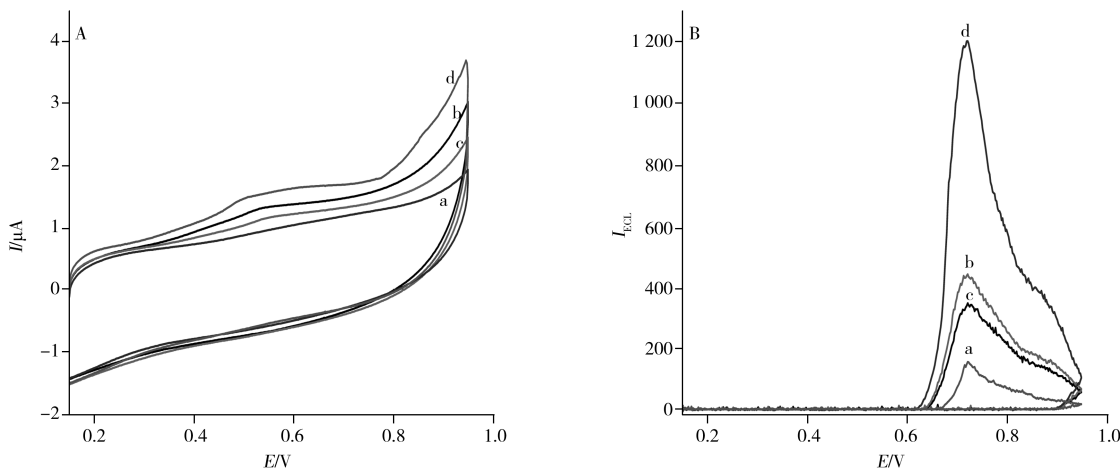


图 2 碱性鲁米诺在 GCE (a) 和 Graphene/GCE (c) 及加入 MTZ 后 GCE (b) 和 Graphene/GCE (d) 上的电化学 (A)/电化学发光行为 (B)

Fig. 2 Cyclic voltammetry curves (A)/ECL - potential profiles (B) of luminol at the GCE (a, b) and Graphene/GCE (c, d)  
luminol:  $2.0 \times 10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ ; MTZ:  $5.0 \times 10^{-7} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ ; scanning rate:  $100 \text{ mV/s}$

## 2.3 实验条件的优化

**2.3.1 反应介质的选择** 由于鲁米诺在碱性介质中往往能呈现出较好的电化学发光特性, 实验分别考察了在饱和硼砂、 $0.1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{Na}_2\text{CO}_3$ 、 $0.1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{NaHCO}_3$ 、 $0.1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{Na}_2\text{CO}_3 - \text{NaHCO}_3$  及  $0.01 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{NaOH}$  5 种不同反应介质中体系的电化学发光 (信噪比  $S/N$ )。结果显示: 在  $0.01 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{NaOH}$  介质中体系呈现最大的信噪比, 故本实验选择最佳反应介质为  $0.01 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{NaOH}$ 。

**2.3.2 石墨烯用量的选择** 分别将  $4.0$ 、 $6.0$ 、 $8.0$ 、 $10.0$ 、 $12.0$ 、 $15.0 \mu\text{L}$  的石墨烯糊状溶液 ( $1.0 \text{ mg} \cdot \text{mL}^{-1}$ ) 滴涂于 6 支不同的玻碳电极表面制成石墨烯修饰电极, 再将其作为工作电极依次进行电化学发光信号检测。研究表明: 随着石墨烯用量的增加, 电化学发光信噪比逐渐增大, 但石墨烯用量达  $8.0 \mu\text{L}$  后, 体系信噪比不再增加且略有下降。这可能是由于石墨烯用量过大会导致其在玻碳电极表面的厚度增加, 反而阻碍了电子的有效传递。因此, 石墨烯的最佳用量选择  $8.0 \mu\text{L}$ 。

**2.3.3 鲁米诺浓度的选择** 本研究中, 鲁米诺作为电化学发光试剂, 其浓度是影响方法灵敏度的重

要因素之一。实验考察了鲁米诺浓度为  $0.1 \sim 1.1 \mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$  时对电化学发光信噪比的影响。结果发现：电化学发光信噪比随着鲁米诺浓度的增加逐渐增大，在鲁米诺浓度为  $0.7 \mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$  时达最大值，此后呈下降趋势。因此，实验选择鲁米诺浓度为  $0.7 \mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

**2.3.4 扫描速率对 ECL 增敏的影响** 本实验采用循环伏安法扫描，考察了扫描速率 ( $20 \sim 200 \text{ mV/s}$ ) 对 ECL 分析信号的影响。结果表明：甲硫咪唑对碱性鲁米诺在石墨烯修饰电极上的 ECL 增敏程度随扫描速率的增大而增大，当扫描速率为  $100 \text{ mV/s}$  时，甲硫咪唑的增敏作用最大；此后再增大扫描速率，ECL 增敏程度基本保持不变。故实验选择最佳扫描速率为  $100 \text{ mV/s}$ 。

## 2.4 线性范围、检出限及精密度

在优化实验条件下，甲硫咪唑在  $6.0 \times 10^{-8} \sim 1.0 \times 10^{-5} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  浓度范围内与其增敏的电化学发光强度 ( $\Delta I_{\text{ECL}}$ ) 呈现良好的线性相关，线性方程为  $\Delta I_{\text{ECL}} = 1\ 646.23c - 42.22$  ( $r = 0.996\ 7$ )。按照 IUPAC 估算出方法的检出限 (LOD) 为  $2.0 \times 10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 。另外，应用 Graphene/GCE 对  $0.5 \mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$  甲硫咪唑进行连续 11 次电化学扫描并记录电化学发光强度，计算得相对标准偏差 (RSD) 为 3.5%，表明该分析法具有较高的精密度。

## 2.5 干扰实验

在优化实验条件下，固定甲硫咪唑浓度为  $0.8 \mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ ，考察了一些常见离子及几种有机物的干扰情况。结果显示：以实验误差不超过  $\pm 5\%$  计算，1 000 倍的  $\text{K}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ ，800 倍的葡萄糖、果糖、乳糖、乙酸，400 倍的淀粉，20 倍的酒石酸、柠檬酸，5 倍的抗坏血酸、尿素及甘氨酸均不干扰测定，表明该方法具有良好的选择性。

## 2.6 实际样品分析

取甲硫咪唑片 10 片，准确称取适量并研细，加水溶解，过滤并定容至 100 mL，精密移取 1.0 mL 进行二次稀释，定容至 100 mL 容量瓶中。取不同体积的上述稀释溶液，按照实验方法在优化条件下测定，同时加入不同浓度的甲硫咪唑标准溶液做加标回收实验，得平均回收率为 90.0%~107%，RSD 为 2.5%~3.4% (表 2)，结果令人满意。

表 2 甲硫咪唑的平均回收率及相对标准偏差 ( $n=3$ )  
Table 2 Average recoveries and RSDs of MTZ ( $n=3$ )

Sample	Estimated value $c/(\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1})$	Added $c/(\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1})$	Found $(\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1})$	Average recovery (%)	RSD (%)
1#	0.10	0.15	0.24	93.3	2.8
2#	0.20	0.15	0.36	107	3.4
3#	0.30	0.30	0.57	90.0	3.0
4#	0.40	0.40	0.77	92.5	2.5

## 3 结 论

本研究利用碱性介质中少量甲硫咪唑能显著增敏鲁米诺在 Graphene/GCE 表面电化学发光信号的原理，实现了对甲硫咪唑的高灵敏检测。该方法通过在玻碳电极表面修饰石墨烯提高了其分析特征，对了解甲硫咪唑在生物体内的代谢水平和作用机制具有重要的参考意义。

### 参考文献:

- [1] Wang Y Z. *J. Instrum. Anal.* (王亚珍. 分析测试学报), **2009**, 28(9): 1018 - 1021.
- [2] Du F J, Luo X W, Li X X. *J. Anal. Sci.* (杜芳静, 罗贤文, 李晓霞. 分析科学学报), **2015**, 31(1): 105 - 107.
- [3] Wen X R, Tu C Q. *China. J. Anal. Lab.* (温欣荣, 涂常青. 分析试验室), **2012**, 31(7): 55 - 57.
- [4] Li X F, Yuan B Z, Zhang J L, Li H L. *Guangzhou Chem. Ind.* (李小芳, 袁碧珍, 张金磊, 李海龙. 广州化工), **2014**, 42(4): 113 - 115.
- [5] Amjadi M, Hallaj T, Asadollahi H, Song Z L, Frutos M D, Hildebrandt N. *Sens. Actuators B*, **2017**, 244: 425 - 432.
- [6] Chi Y H, Yun Y G. *Food & Machinery* (池永红, 云雅光. 食品与机械), **2015**, 31(5): 61 - 69.
- [7] Robert Z. *J. Chromatogr. B*, **2008**, 869(1/2): 67 - 74.
- [8] Homeira E, Ali A A, Laleh A, Nafiseh S. *J. Sep. Sci.*, **2012**, 35(16): 2040 - 2047.
- [9] Farzampour L, Amjadi M S. *Luminescence*, **2014**, 155: 226 - 230.

- [10] Dang Z Z, Ji D Y, Tian R, Ma H Y. *J. Instrum. Anal.* (党珍珍, 纪得勇, 田锐, 马红燕. 分析测试学报), **2018**, 37(3): 355–358.
- [11] Ren C S, Liao H P, Yu Q, Zhang X M, Ying M. *J. Anal. Sci.* (任春生, 廖海平, 余清, 张晓敏, 应敏. 分析科学学报), **2014**, 30(1): 140–142.
- [12] Liang N G, Li J J, Cai Z, Jiang C W, Ye D N. *J. Shanxi Univ. : Nat. Sci.* (梁宁刚, 李娟娟, 蔡卓, 蒋翠文, 叶丹妮. 山西大学学报: 自然科学版), DOI: 10. 13451/j. cnki. shanxi. univ(nat. sci. ). **2018**. 01. 17. 002.
- [13] Parisas D, Fahimeh J. *Bioelectrochemistry*, **2015**, 101: 66–74.
- [14] Mu M, Zhang Y T, Qi G C, Liu Z Y. *J. Instrum. Anal.* (慕苗, 张琰图, 齐广才, 刘珍叶. 分析测试学报), **2014**, 33(5): 557–560.
- [15] Mu M, Bai Y X, Bai N, Gao J J, Gong Y. *Liaoning Chem. Ind.* (慕苗, 白艳霞, 白妮, 高晶晶, 弓莹. 辽宁化工), **2017**, 46(9): 846–848.
- [16] Hua L J, Han H Y, Chen H B. *Electrochim. Acta*, **2009**, 54: 1389–1394.
- [17] Kong D X, Li Q L, Jiang J, Zheng X Y, Zhou X C, Chi Y W, Chen G N. *Luminescence*, **2015**, 30: 12–17.
- [18] Liu Z Y, Qi W J, Xu G B. *Chem. Soc. Rev.*, **2015**, 44(10): 3117–3142.
- [19] Li L L, Chen Y, Zhu J J. *Anal. Chem.*, **2017**, 89(1): 358–371.
- [20] Liu F Y, Shao J T, Zhao Y Q. *Anal. Method*, **2014**, 6(6): 6483–6487.
- [21] Wu B W, Wang Z H, Xue Z H, Zhou X B, Du J, Liu X H, Lu X Q. *Analyst*, **2012**, 137(16): 3644–3652.
- [22] He Q Y, Wu S X, Yin Z Y, Zhang H. *Chem. Sci.*, **2012**, 3(6): 1764–1772.
- [23] Wu S X, He Q Y, Tan C L, Wang Y D, Zhang H. *Small*, **2013**, 9(8): 1160–1172.
- [24] Jiang D, Du X J, Liu Q, Zhou L, Qian J, Wang K. *ACS Appl. Mater. Int.*, **2015**, 7(5): 3093–3100.
- [25] Wu Y Y, Zheng Z Y, Yang J Y, Lin Y J, Zhang X S, Chen Y W, Gao W H. *J. Electroanal. Chem.*, **2018**, 817: 118–127.
- [26] Feng X B, Gan N, Zhang H R, Yan Q, Li T H, Gao Y T, Hu F T, Yu H W, Jiang Q L. *Electrochim. Acta*, **2015**, 170: 292–299.
- [27] Du F K, Zhang H, Tan X C, Yan J, Liu M, Chen X, Wu Y Y, Feng D F, Chen Q Y, Cen J M, Liu S G, Qiu Y Q, Han H Y. *Biosens. Bioelectron.*, **2018**, 106: 50–56.

(责任编辑: 周启动)