

基于 rGO/g-C₃N₄ 纳米材料电化学传感器制备及其在日落黄检测中的应用

常惟丹^{1*}, 鲍长俊², 徐军¹

(1. 河南牧业经济学院食品与生物工程学院, 郑州 450046; 2. 昆明贵研药业有限公司, 昆明 650033)

摘要: 目的 开发一种简单、高灵敏度的电化学传感器, 用于定量测定商业食品中日落黄(sunset yellow, SY)的含量。**方法** 以氧化石墨烯(graphene oxide, GO)、石墨相氮化碳(g-C₃N₄)为原料, 水热还原制备复合材料(rGO/g-C₃N₄)。通过滴涂法将所制备的复合物溶液滴到工作电极上, 制备传感器。**结果** 在最优实验条件下, 用差分脉冲伏安法(differential pulse voltammetry, DPV)对不同质量浓度(20~120 mg/L)的 SY 进行检测, 线性方程为 $\Delta I=0.06864C+0.06205$, 检出限为 0.125 mg/L。本传感器特异性和稳定性良好, 在实际样品检测中, 回收率为 97.8%~101.2%。**结论** rGO/g-C₃N₄ 复合纳米材料制备的传感器能够实现对 SY 的快速、灵敏检测, 且该方法操作简单、成本低, 在食品工业、安全检测等领域有巨大的应用前景。

关键词: 日落黄; rGO/g-C₃N₄; 差分脉冲伏安法; 检测

Preparation of electrochemical sensor base on rGO/g-C₃N₄ nanomaterials and its application in sunset yellow detection

CHANG Wei-Dan^{1*}, BAO Chang-Jun², XU Jun¹

(1. School of Food and Biological Engineering, Henan University of Animal Husbandry and Economy, Zhengzhou 450046, China; 2. Kunming Guiyan Pharmaceutical Co., Ltd., Kunming 650033, China)

ABSTRACT: Objective To develop a simple and highly sensitive electrochemical sensor for quantitative determination of sunset yellow (SY) in commercial food. **Methods** The composite (rGO/g-C₃N₄) was prepared by hydrothermal reduction using graphene oxide (GO) and graphite phase nitrogen carbide (g-C₃N₄) as raw materials. The prepared composite solution was dropped onto the working electrode by a drop coating method to prepare the sensor. **Results** Under the optimal experimental conditions, differential pulse voltammetry (DPV) was used to detect SY at different mass concentrations (20~120 mg/L). The linear equation was $\Delta I=0.06864C+0.06205$, and the limit of detection was 0.125 mg/L. The specificity and stability of the sensor were studied well. In the actual sample detection, the recovery rate was 97.8%~101.2%. **Conclusion** The sensor made of rGO/g-C₃N₄ composite nanomaterial can quickly and sensitively detect SY, and the method is simple to operate and cheap, which has great application prospects in food industry, safety detection and other fields.

KEY WORDS: sunset yellow; rGO/g-C₃N₄; differential pulse voltammetry; detection

基金项目: 河南省高等学校重点科研项目(22B550003、22B150005)、河南牧业经济学院博士启动项目(M4050087)

Fund: Supported by the Project of the Key Scientific Research Projects of Colleges and Universities in Henan Province (22B550003, 22B150005), and the Doctoral Research Fund Project of Henan University of Animal Husbandry and Economy (M4050087)

*通信作者: 常惟丹, 博士, 讲师, 主要研究方向为食品安全与控制。E-mail: cwd201088@163.com

Corresponding author: CHANG Wei-Dan, Ph.D, Lecturer, School of Food and Biological Engineering, Henan University of Animal Husbandry and Economy, No.6, Longzi North Road, Zhengdong New District, Zhengzhou 450046, China. E-mail: cwd201088@163.com

0 引言

为了使食品具有诱人的颜色和风味, 食品制造商在加工过程中往往会添加一些食品着色剂。它们可以是天然的, 也可以是合成的。合成食品着色剂因其生产成本低、色泽均匀性好、制备过程稳定性好等优点, 已广泛应用于食品工业中取代天然食品着色剂。合成着色剂通常含有偶氮官能团和芳香环结构, 可影响人体健康^[1-5]。日落黄(sunset yellow, SY)是一种偶氮着色剂, 也叫晚霞黄、夕阳黄、橘黄、食用黄色三号, 通常存在于食品中, 过多摄入会导致呕吐、腹泻, 甚至会对肝脏造成损害, 已有部分国家限制 SY 在食品中的使用^[6-11]。

目前测定 SY 的方法有很多种, 主要有荧光法^[12]、紫外分光光度法^[13-14]、高效液相色谱法^[15-17]、毛细管电泳法^[18]和电化学法^[19-22]。与其他测定方法相比, 电化学方法具有测定速度快、灵敏度高、测定成本低等优点, 在食品合成色素检测中有潜在的应用前景^[23-24]。为了提高电化学测定灵敏度, 常常对电极进行修饰。氧化石墨烯(graphene oxide, GO)和石墨相氮化碳(g-C₃N₄)由于其具有电荷/传质路径短、反应位点丰富、易于功能化等特点, 常常被作为原料合成复合材料增强其电化学性能^[25-26]。石墨烯基纳米材料由于具有较好的电化学性能, 能够有效地加速电子传递, 提高电极表面积, 而被广泛用于传感器修饰中^[27-28]。研究表明^[29-30], g-C₃N₄/GO 复合材料有良好的光催化性能、三维结构和多孔结构, 目前广泛应用于光催化领域, 而在食品安全检测领域报道较少。

本研究以二维的 GO 和 g-C₃N₄ 为原料, 合成三维的纳米复合材料用于电极修饰, 并采用多种手段对修饰后的传感器进行表征。主要研究了 SY 在所建传感器上的电化学行为, 并探讨了传感器制备及测定过程中的影响因素, 建立了 SY 定量分析的检测平台, 对于实现 SY 的快速测定有重要意义。

1 材料与方法

1.1 材料与试剂

芬达饮料购自于当地超市。

GO (1~5 层)、g-C₃N₄(南京先丰纳米材料有限公司); SY 标准品(精度 99.9%, 坛墨质检标准物质中心); 其他试剂(分析纯, 国药集团化学试剂有限公司); 实验用水为二次蒸馏水。

1.2 仪器与设备

CHI660E 电化学工作站(上海辰华仪器有限公司); Nicolet iS10 红外光谱仪、FEIQuantaFEG250 场发射扫描电镜(美国赛默飞世尔科技公司); D8 Advance X 射线衍射仪(德国布鲁克公司)。

1.3 实验方法

1.3.1 rGO/g-C₃N₄ 复合材料的制备

将 4.0 mg g-C₃N₄ 置于 20 mL 2 mg/mL 的 GO 溶液中, 10°C 超声 3 h, 直至溶液中无黄色粉末, 随后将混合液转移至 25 mL 反应釜中, 160°C 下水热反应 12 h, 冷却至室温后取出, 用去离子水冲洗柱状水凝胶数遍后, 在 -40°C 下进行真空冷冻干燥 36 h, 即得到多孔的三维柱状 rGO/g-C₃N₄ 复合材料。对比材料 rGO 的制备参考文献[31]进行合成。

1.3.2 传感器的制备

用 0.05 μm 的三氧化二铝粉浆对玻碳电极进行抛光洁净处理, 然后用超纯水冲洗干净后, 置于红外灯下 10 min, 再在电极表面滴加 4 μL 4 mg/mL 的 rGO/g-C₃N₄ 溶液, 置于红外灯下 10 min, 即可得到 rGO/g-C₃N₄ 修饰的电极, 记作 rGO/g-C₃N₄/玻碳电极(glassy carbon electrode, GCE)。

1.3.3 电化学测试方法

采用三电极体系进行电化学测试, 玻碳电极作为工作电极, 铂丝电极为对电极, Ag/AgCl 电极为参比电极。采用循环伏安法(cyclic voltammetry, CV)进行测试时, 将三电极置于含有 5.0 mmol/L 亚铁氰化钾的 0.1 mol/L 的氯化钾测试液中, 设置扫描范围为 -0.1~0.5 V, 扫描速率为 0.05 V/s。采用电化学阻抗法(electrochemical impedance spectroscopy, EIS)进行测试时, 将三电极置于含有 5.0 mmol/L 亚铁氰化钾的 0.1 mol/L 的氯化钾测试液中, 设置频率设置为 0.1~10⁶ Hz, 振幅设置为 5 mV。采用差分脉冲伏安法(differential pulse voltammetry, DPV)对 SY 进行检测。将三电极置于 0.1 mol/L pH=7.0 的磷酸盐(phosphate buffered solution, PBS)背景溶液中, 设置初始电压为 0.5 V, 终止电压为 0.8 V。

1.3.4 实际样品的处理

取摇匀后的饮料 20 mL 超声 20 min 后, 吸取 10.00 mL, 然后用 0.1 mol/L pH 7 的 PBS 定容至 100 mL 容量瓶中备用。

2 结果与分析

2.1 rGO/g-C₃N₄ 复合材料的表征

2.1.1 扫描电镜与能谱分析

采用扫描电镜和能谱对复合材料的形貌与元素分布进行分析。图 1A 为经过水热还原后得到的黑色三维水凝胶柱 rGO/g-C₃N₄, 图 1B 为切片后经冷冻干燥得到的 rGO/g-C₃N₄ 复合材料。采用扫描电镜对 rGO(图 1C)和 rGO/g-C₃N₄(图 1D)材料进行形貌观察, rGO 呈现片片堆积的层状结构且表面有少量褶皱存在, 而 rGO/g-C₃N₄ 可看到其具有明显的褶皱和孔洞三维形貌, 说明该复合材料与 rGO 相比, 具有较大的比表面积, 能够有效地促进电子传递。能谱结果显示, rGO/g-C₃N₄ 复合材料中, 碳(图 1E)、氧(图 1F)、氮(图 1G)元素分布均匀, 其中碳元素含量为 73.9%、氧元素含量为 15.6%、氮元素含量为 10.5%。表明 rGO/g-C₃N₄ 复合材料制备成功。

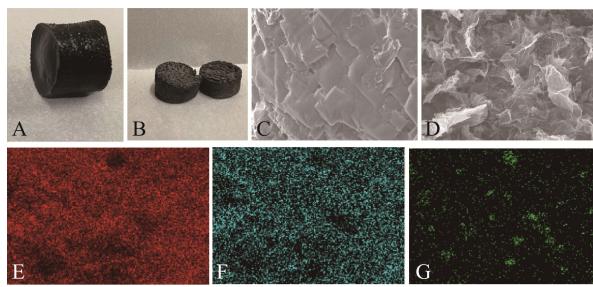


图 1 rGO/g-C₃N₄ 的形貌(A、B、C、D)和元素分布图(E、F、G)

Fig.1 Morphology (A, B, C, D) and element distribution (E, F, G) of rGO/g-C₃N₄

2.1.2 红外和 X 射线衍射分析

为了进一步地证明 rGO/g-C₃N₄ 复合材料的成功制备, 采用红外和 X 射线衍射分析法对材料进行表征。从图 2A 的 GO 红外吸收曲线可以得知: 3400 cm⁻¹ 附近较强的吸收峰归属于-OH 的伸缩振动; 1760 cm⁻¹ 处的吸收峰归属于 C=O 的伸缩振动, 1675 cm⁻¹ 处的吸收峰主要是石墨结构中的 C=C 所引起的; 1235 cm⁻¹ 处的吸收峰归属于 GO 表面的环氧基衍射; 1060 cm⁻¹ 处吸收峰归属于 C-O 的伸缩振动。当 GO 被还原后, 由于含氧官能团的减少, 使得对应位置无明显吸收峰, 表明 GO 被还原, rGO 成功制备。通过对 rGO/g-C₃N₄ 和 rGO/g-C₃N₄ 的红外光谱, 可以得知, rGO/g-C₃N₄ 复合材料红外吸收光谱与 g-C₃N₄ 类似, 只出现了 CN 杂环特征峰, 如: 1629 cm⁻¹ 处的吸收峰归属于 C=N 的伸缩振动, 1228、1318 和 1403 cm⁻¹ 处的峰归属于芳香 C-N 的伸缩振动, 808 cm⁻¹ 处的峰归属于三嗪环的弯曲振动。而 rGO 特征峰则未观察到, 这可能是由于复合材料中 GO 含量较少所致^[32]。

X 射线衍射分析结果如图 2B 所示, rGO 在 2θ 为 25° 时有较大的衍射峰, 相对于 GO 特征吸收峰 10.7° 而言, 发生了位移, 说明 rGO 成功制备。与 rGO 相比, rGO/g-C₃N₄ 特征峰位于 26.5°, 这可能是由于在水热过程中 g-C₃N₄ 分布在石墨烯中, 两者之间由于 π-π 键堆积的相互作用而使

衍射峰发生了位移^[33]。

2.2 传感器电化学行为分析

采用 CV 和 EIS 对不同修饰电极的电化学行为进行分析, 结果如图 3 所示。在循环伏安测试中, 与裸电极相比, 经 rGO 修饰的电极峰电流增强, 而经 rGO/g-C₃N₄ 复合材料修饰的电极峰电流增强程度更明显。这是因为 rGO 和 rGO/g-C₃N₄ 复合材料都可以增大电极表面积, 促进电子传递, 其中 rGO/g-C₃N₄ 复合材料具有更明显的电化学优势。同时, 阻抗结果显示, 裸电极阻值为 149.6 Ω, rGO 修饰的电极阻值为 99.4 Ω, rGO/g-C₃N₄ 修饰的电极阻值为 48.5 Ω, 与循环伏安结果一致, 进一步说明, rGO/g-C₃N₄ 复合材料修饰电极在电化学分析中具有很好的应用前景。

2.3 实验条件优化

为了提高测定灵敏度, 对复合材料的浓度、缓冲盐类型和 pH、复合材料修饰量进行优化。

以 SY 质量浓度为 50 mg/L 的 0.1 mol/L pH=7 的 PBS 为背景溶液, 用 5 μL 不同质量浓度(2、3、4、5 和 6 mg/mL) 的 rGO/g-C₃N₄ 溶液对电极进行修饰, 平行测定 3 次。结果显示: 随着 rGO/g-C₃N₄ 溶液浓度的升高, 峰电流呈现先增后降的变化趋势, 当质量浓度为 4 mg/mL 时, 峰电流最大, 这可能由于复合材料溶解不完全, 有效浓度降低所致。因此, 选用 rGO/g-C₃N₄ 质量浓度为 4 mg/mL 时对电极进行修饰。

分别在含有 50 mg/L SY 的磷酸氢二钾-氢氧化钠、磷酸氢二钠-磷酸二氢钾、磷酸二氢钠-磷酸氢二钠 3 种缓冲盐(浓度均为 0.1 mol/L, pH=7)溶液进行 DPV 测试, 平行测定 3 次。结果显示以磷酸氢二钾-氢氧化钠为缓冲液时峰电流响应较高, 更适宜作为 SY 检测测试底液。随后探讨了磷酸氢二钾-氢氧化钠缓冲液 pH (5、6、7、8 和 9)对峰电

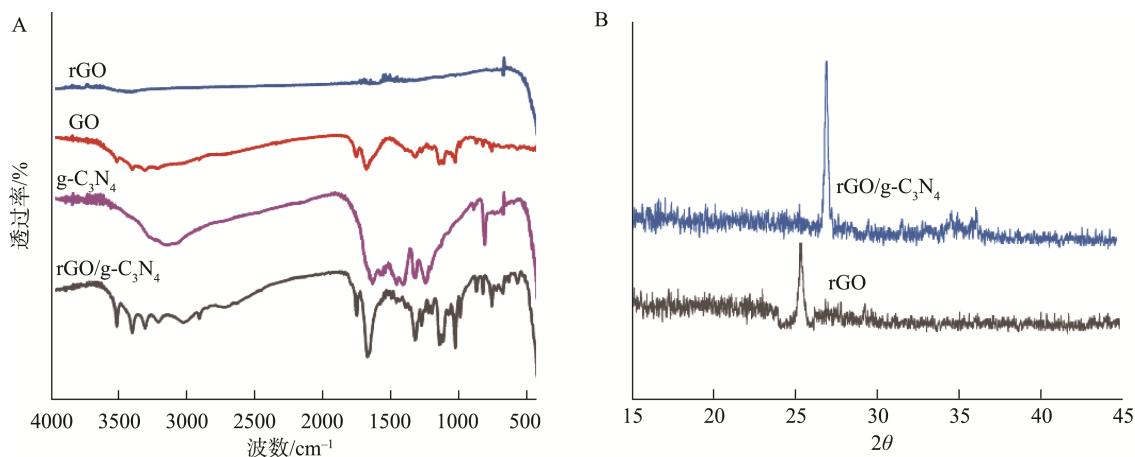


图 2 红外(A)和 X 射线衍射(B)分析图谱
Fig.2 Infrared (A) and X-ray diffraction (B) analysis patterns

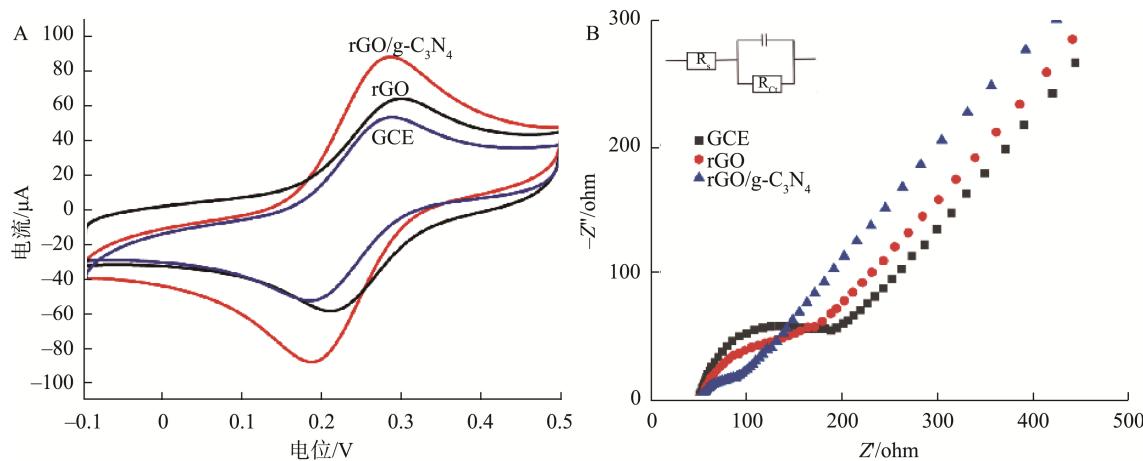


图3 不同电极的 CV (A) 和 EIS (B) 曲线
 Fig.3 CV (A) and EIS (B) curves of different electrodes

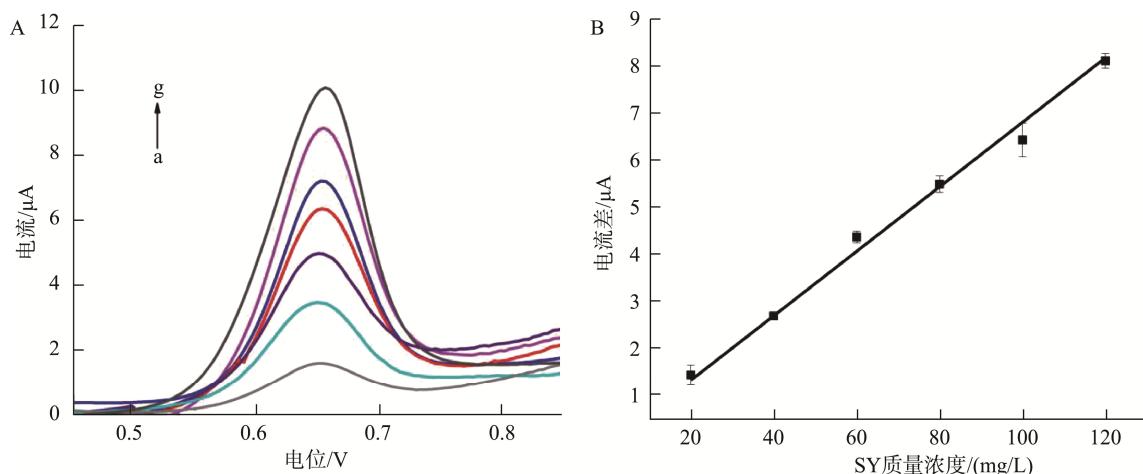
流的影响, 平行测定3次。结果显示, 随着pH的不断升高, 峰电流呈现先增后降的趋势, 当pH为7时, 峰电流最高。这说明在较高的pH下质子短缺, 溶液缺乏质子, 导致电化学反应困难, 峰值电流降低。SY是一种质子型的芳香族分子, 在高pH条件下易发生去质子化并转变为阴离子, 导致SY与rGO/g-C₃N₄之间产生静电排斥, 因此, 选择pH=7为测定SY的最佳实验条件。

对4 mg/mL rGO/g-C₃N₄复合材料修饰用量(2、3、4、5和6 μL)进行优化, 在含有50 mg/L SY的磷酸氢二钾-氢氧化钠(0.1 mol/L, pH=7)溶液中进行DPV测试, 平行测定3次。结果显示, 随着修饰用量的不断增加, 峰电流呈现先增后降的变化趋势, 当修饰用量为4 μL时, 峰电流值达到最大。这可能是由于随着rGO/g-C₃N₄修饰用量的增加, 可以增加电极表面积, 引起峰电流增大, 但超过一定范围后,

会导致电极修饰膜变厚, 阻碍电子传递。因此, 4 μL为最佳修饰用量。

2.4 SY 检测的标准曲线

在最佳条件下采用DPV法研究了峰电流值的大小与SY质量浓度之间的关系, 平行测定3次, 结果如图4所示。从图4A中可以看出, 随着SY质量浓度的增大, 峰电流值也随之增大。将扣除空白后的峰电流值(ΔI)和SY质量浓度(C)进行线性拟合, 从图4B可以得知, 当SY质量浓度在20~120 mg/L范围内, 峰电流差值与其具有良好的线性关系。线性方程为 $\Delta I = 0.06864C + 0.06205$, 相关系数为0.9948。检出限(limit of detection, LOD)依据文献^[21]方法, 即3倍空白溶液的标准偏差除以拟合曲线的斜率进行计算, LOD为0.125 mg/L, 说明所建方法具有较低的LOD。



注: a→g: 0、20、40、60、80、100、120 mg/L。
 图4 不同质量浓度 SY 的 DPV 图(A) 及 SY 质量浓度与峰电流值的线性关系图(B)

Fig.4 DPV diagram of different mass concentrations of SY (A) and linear relationship between SY mass concentration and peak current (B)

2.5 稳定性与抗干扰能力分析

用同一根工作电极每隔 2 d (1、3、5、7、9 d) 在同样条件下对 60 mg/LSY 溶液进行测定, 平行测定 5 次。相对标准偏差(relative standard deviation, RSD)为 2.53%, 结果表明 rGO/g-C₃N₄/GCE 具有良好的稳定性。

为了考察 rGO/g-C₃N₄/GCE 的抗干扰能力, 在相同的条件下加入与 SY 结构或颜色相近的物质进行测定, 在含有 60 mg/L SY 的背景溶液中加入 100 倍的柠檬黄、苋菜红、橙黄和鸡蛋黄, 分别记录加入前后所引起的峰电流变化差值, 平行测定 3 次, 发现峰电流变化差值均小于 5%, 这说明, 100 倍干扰物存在时, 虽会引起峰电流值发生微小改变, 但可忽略不计, 因此, 说明 rGO/g-C₃N₄/GCE 测定 SY 时具有较好的抗干扰能力。

2.6 加标回收实验

为了验证所建方法在实际样品检测中的应用, 将 rGO/g-C₃N₄/GCE 传感器应用于饮料样品中 SY 的检测, 样品测定结果满足食品添加剂使用标准(GB 2760—2014《食品安全国家标准 食品添加剂使用标准》)要求。随后进行加标回收实验对方法的准确度进行考察, 平行测定 3 次, 结果如表 1 所示, 不同加标实验, 回收率在 97.8%~101.2% 范围内, RSDs 小于 5%, 证明该传感器具有较好的准确性和可靠性。

表 1 样品中 SY 的测定结果(*n*=3)
Table 1 Determination results of SY in samples (*n*=3)

样品	加入值 /(mg/L)	期望值 /(mg/L)	测得值 /(mg/L)	回收率 /%	RSDs /%
1	0	-	6.32	-	-
2	20	26.32	25.88	97.8	2.23
3	50	56.32	56.72	100.8	3.18
4	70	76.32	77.15	101.2	3.45

注: -表示无数值。

3 结 论

本研究基于 rGO/g-C₃N₄ 纳米材料修饰的 GCE, 成功开发了一种新型灵敏的电化学传感器, 用于测定饮料中的 SY。rGO/g-C₃N₄ 大的比表面积和电催化活性的协同作用, 使得改性电极表面的电子转移能力和积累效率与常用电极修饰材料 rGO 相比显著提高。对所构建的传感器的准确性、稳定性和抗干扰能力进行评价, 结果令人满意, 本研究为开发 SY 快速检测设备, 实现现场检验提供了理论基础。

参考文献

- [1] YAMJALA K, NAINAR MS, RAMISETTI NR. Methods for the analysis of azo dyes employed in food industry-a review [J]. Food Chem, 2016, 192: 813–824.
- [2] DENG D, YANG H, LIU C, et al. Ultrasensitive detection of Sudan I in food samples by a quantitative immunochromatographic assay [J]. Food Chem, 2019, 277: 595–603.
- [3] ROVINA K, ACUNG L, SIDDIQUEE S, et al. Extraction and analytical methods for determination of sunset yellow (E110)-a review [J]. Food Anal Method, 2017, 10(3): 773–787.
- [4] VIDAL M, GARCIA-ARRONA R, BORDAGARAY A, et al. Simultaneous determination of color additives tartrazine and allura red in food products by digital image analysis [J]. Talanta, 2018, 184: 58–64.
- [5] AFKHAMI A, MADRAKIAN T, RAZAVI-MASHOUF M, et al. Electrochemically controlled solid phase microextraction based on nanostructured polypyrrole film for selective extraction of sunset yellow in food samples [J]. J Iran Chem Soc, 2021, 18: 3127–3135.
- [6] 汤小玉, 罗云敬, 魏安琪, 等. 同步与三维荧光光谱法研究日落黄和人血清蛋白的相互作用[J]. 光谱学与光谱分析, 2018, 38(10): 3129–3135.
TANG XY, LUO YJ, WEI ANQ, et al. Application of synchronous and three-dimensional fluorescent spectrometry in studies on interaction between sunset yellow and human serum albumin [J]. Spectrosc Spectr Anal, 2018, 38(10): 3129–3135.
- [7] HASHEM E, SALEH M, ALSALAHI N, et al. Advanced spectrophotometric analysis of sunset yellow dye E110 in commercial food samples [J]. Food Anal Method, 2017, 10(4): 865–875.
- [8] TAHTAISLEYEN S, GORDUK O, SAHIN Y. Electrochemical determination of tartrazine using a graphene/poly (L-phenylalanine) modified pencil graphite electrode [J]. Anal Lett, 2020, 53(11): 1683–1703.
- [9] THIRUMALRAJ B, RAJKUMAR C, CHEN S, et al. Carbon aerogel supported palladium-ruthenium nanoparticles for electrochemical sensing and catalytic reduction of food dye [J]. Sensor Actuat B-Chem, 2018, 257: 48–59.
- [10] KOLOZOF P, FLOROU A, SPYROU K, et al. In-situ tailoring of the electrocatalytic properties of screen-printed graphite electrodes with sparked generated molybdenum nanoparticles for the simultaneous voltammetric determination of sunset yellow and tartrazine [J]. Sensor Actuat B-Chem, 2020, 304: 127268.
- [11] EFSA Panel on Food Additives and Nutrient Sources added to Food (ANS). Reconsideration of the temporary ADI and refined exposure assessment for sunset yellow FCF (E 10) [J]. EFSA J, 2014, 12(7): 3765.
- [12] AK A, UG A, IH B, et al. Synthesis of highly fluorescent carbon dots from spices for determination of sunset yellow in beverages [J]. Microchem J, 2021, 170: 1–8.
- [13] 郭群, 杜艳红, 张李文, 等. 紫外分光光度法测定合成色素日落黄和柠檬黄[J]. 农技服务, 2016, 14(33): 18–19.
GUO Q, DU YH, ZHANG LW, et al. Determination of synthetic pigments sunset yellow and tartrazine by UV spectrophotometry [J]. Agric Technol Serv, 2016, 14(33): 18–19.
- [14] KUMARI P, ALKA, KUMAR S, et al. Efficient system for encapsulation and removal of paraquat and diquat from aqueous solution: 4-sulfonatocalix [n]arenes and its magnetite modified nanomaterials [J]. J Environ Chem Eng, 2019, 7(3): 103130.

- [15] 黎银波, 孟庆玉, 殷帅, 等. 高效液相色谱法测定药用辅料日落黄的含量[J]. 中南药学, 2012, 10(4): 251–253.
- LI YB, MENG QY, YIN S, et al. HPLC determination of sunset yellow of pharmaceutical supplementary materials [J]. Cent South Pharm, 2012, 10(4): 251–253.
- [16] 孙晓娟, 许泳吉. 高效液相色谱法同时测定饮料中柠檬黄、日落黄和诱惑红的含量[J]. 青岛科技大学学报(自然科学版), 2019, 40(2): 30–35.
- SUN XJ, XU YJ. Simultaneous determination of tartrazine, sunset yellow and allura red in beverages by high performance liquid chromatography [J]. J Qingdao Univ Sci Technol (Nat Sci Ed), 2019, 40(2): 30–35.
- [17] ALP H, BASKAN D, YASAR A, et al. Simultaneous determination of sunset yellow FCF, allura red AC, quinoline yellow WS, and tartrazine in food samples by RP-HPLC [J]. J Chem, 2018, 2018: 1–6.
- [18] 陈林情. 毛细管电泳在食品安全检测中的应用[D]. 南宁: 广西大学, 2017.
- CHEN LQ. Application of capillary electrophoresis in food safety detection [D]. Nanning: Guangxi University, 2017.
- [19] 于千卉. 电化学方法检测食品中人工合成着色剂日落黄的研究[D]. 扬州: 扬州大学, 2020.
- YU QH. Study on electrochemical determination of synthetic colorant sunset yellow in food stuff [D]. Yangzhou: Yangzhou University, 2020.
- [20] 张金磊, 凌绍明, 段艳, 等. 石墨烯量子点修饰玻碳电极对日落黄的电化学检测[J]. 化学传感器, 2017, 37(2): 60–64.
- ZHANG JL, LING SM, DUAN Y, et al. Study of sunset yellow and its determination using graphene quantum dots modified glassy carbon electrodes [J]. Chem Sens, 2017, 37(2): 60–64.
- [21] ROVINA K, SIDDIQUEE S, SHAARANI S. Highly sensitive electrochemical determination of sunset yellow in commercial food products based on CHIT/GO/MWCNTs/AuNPs/GCE [J]. Food Control, 2017, 82: 66–73.
- [22] GAO Y, LI T, ZHANG T, et al. Rational design of ultrahigh sensitive sunset yellow sensor based on 3D hierarchical porous graphitic carbon with sub-nanopores [J]. Food Chem, 2021, 365(14): 130631.
- [23] LI L, ZHENG H, GUO L, et al. A sensitive and selective molecularly imprinted electrochemical sensor based on Pd-Cu bimetallic alloy functionalized graphene for detection of amaranth in soft drink [J]. Talanta, 2019, 197: 68–76.
- [24] FERNANDA C, MARTIN S, MICHELLE A, et al. Analytical methods in food additives determination: Compounds with functional applications [J]. Food Chem, 2019, 272: 732–750.
- [25] DEIMINIAT B, ROUNAGHI G. A novel visible light photoelectrochemical aptasensor for determination of bisphenol a based on surface plasmon resonance of gold nanoparticles activated g-C₃N₄ nanosheets [J]. Electroanal Chem, 2021, 886: 115122.
- [26] SALAGARE S, ADARAKATTI P, VENKATARAMANAPPA Y, et al. Electrochemical nitrite sensing employing palladium oxide-reduced graphene oxide (PdO-RGO) nanocomposites: Application to food and environmental samples [J]. Ionics, 2022, 28(2): 927–938.
- [27] ZHANG R, CHEN W. Recent advances in graphene-based nanomaterials for fabricating electrochemical hydrogen peroxide sensors [J]. Biosens Bioelectron, 2017, 89: 249–268.
- [28] MURTHY H, KELELE K, RAVIKUMAR C, et al. Graphene-supported nanomaterials as electrochemical sensors: A mini review [J]. Results Chem, 2021, 3(9): 100131.
- [29] LI Y, TANG R, JIN R, et al. Ultrasonic-microwave assisted synthesis of GO/g-C₃N₄ composites for efficient photocatalytic H₂ evolution [J]. Solid State Sci, 2019, 97: 105990.
- [30] CHEN T, ZHANG J, GE H, et al. Efficient extraction of uranium in organics-containing wastewater over g-C₃N₄/GO hybrid nanosheets with type-II band structure [J]. J Hazard Mater, 2020, 384: 121383.
- [31] 陈威风, 庄军辉, 刘俊桃, 等. 嘴虫胺分子印迹电化学传感器的制备与应用[J]. 分析试验室, 2022, 41(1): 59–65.
- CHEN WF, ZHUANG JH, LIU JT, et al. Preparation and application of clothianidin molecular imprinted electrochemical sensor [J]. Chin J Anal Lab, 2022, 41(1): 59–65.
- [32] HAO Q, HAO S, NIU X, et al. Enhanced photochemical oxidation ability of carbon nitride by π–π stacking interactions with grapheme [J]. Chin J Catal, 2017, 38(2): 278–286.
- [33] 渠源多. g-C₃N₄/石墨烯基柔性超级电容器的制备及性能研究[D]. 长春: 长春工业大学, 2020.
- QU YD. Preparation and performance of g-C₃N₄/graphene-based flexible supercapacitor [D]. Changchun: Changchun University of Technology, 2020.

(责任编辑: 张晓寒 于梦娇)

作者简介



常惟丹, 博士, 讲师, 主要研究方向为食品安全与控制。

E-mail: cwd201088@163.com