DOI:10.12441/spyswjs.20220819001 [文章编号] 1673-1689(2024)08-0050-08

聚二乙炔囊泡用于饮料酒中乙醇的可视化检测

陈 荤[1,2] 张雨婷[1,2] 王晓丽[1,2] 周楠迪[1,2*]

(1. 江南大学生物工程学院,江苏 无锡 214122; 2. 江南大学糖化学与生物技术教育部重点实验室,江苏 无锡 214122)

摘要:随着人们生活水平的提升,饮料酒的消费逐渐上升,引起了市场监管和更多消费者对其品质和乙醇检测方面的关注。因此开发一种操作简单、检测迅速且结果直观的新型乙醇检测器十分必要。作者设计并制备了用于检测饮料酒中乙醇的聚二乙炔(polydiacetylene,PDA)囊泡,通过饮料酒中乙醇对PDA囊泡结构的扰动和基团的作用,使囊泡由无乙醇存在时的蓝色逐渐转变为有乙醇时的红色,从而检测产品的乙醇体积分数。结果表明,乙醇体积分数为30%~90%时,与PDA囊泡的比色响应(colorimetric response,CR)值具有良好的线性关系,在实际酒样检测中的相对标准偏差为1.45%~2.23%,裸眼识别颜色变化效果较好。此方法具有高效便捷、结果可视化、反应迅速的优点,为饮料酒中乙醇的检测提供了新方法。

关键词:饮料酒;聚二乙炔囊泡;可视化检测

Visual Detection of Ethanol in Alcoholic Beverages Based on Polydiacetylene Vesicles

CHEN Luo[1,2] *ZHANG Yuting*[1,2] *WANG Xiaoli*[1,2] *ZHOU Nandi*[1,2*]

(1. School of Biotechnology, Jiangnan University, Wuxi 214122, China; 2. Key Laboratory of Carbohydrate Chemistry and Biotechnology, Ministry of Education, Jiangnan University, Wuxi 214122, China)

Abstract: As the quality of life improves, the consumption of alcoholic beverages is gradually increasing, leading to heightened market supervision and consumer focus on quality and ethanol testing. Consequently, there is a pressing need to develop novel ethanol detector that is simple to operate, provides rapid detection, and yields intuitive results. The author has designed and developed polydiacetylene (PDA) vesicles for detecting ethanol volume fraction in beverages. The ethanol in the alcoholic beverage disrupts the structure of the PDA vesicles and interacts with their functional groups, causing a gradual color change in the vesicles from blue in the absence of ethanol to red in its presence, thereby allowing for the detection of the ethanol volume fraction in the product. The results demonstrated a good linear relationship between the ethanol volume fraction (30%~90%) and the colorimetric response (CR) of the PDA vesicles. The relative standard deviation in real wine sample detection ranged from 1.45%~2.23%, with color changes being easily detectable to the naked eye. This method is both efficient and convenient, offering the advantages of visual accessibility and rapid response, thereby providing a novel approach for ethanol detection in alcoholic beverages.

Keywords: alcoholic beverages; polydiacetylene vesicles; visual detection

饮料酒包括发酵酒、蒸馏酒和配制酒[1],适度饮酒有助于提高机体的抗氧化、抗炎和抗抑郁能力,具有一定保健作用[2];但过量饮酒可能对饮用者的身体造成危害[3]。科研人员在饮料酒品质提升方面的研究已取得了一定进展[4]。饮料酒品质检测的重要指标之一是乙醇体积分数[5],因此,饮

基金项目:国家自然科学基金项目(42177212, 21877054)。

通信作者:周楠迪(1974—),男,博士,教授,博士研究生导师,主要从事生物大分子的结构与功能、分子识别与生物分析、纳米生物技术研究。E-mail: zhounandi@jiangnan.edu.cn

收稿日期:2022-08-19 **修回日期:**2022-12-03

料酒中乙醇体积分数的快速、可视化检测，对于保护消费者身体健康和确保饮料酒的产品质量具有重要意义。

目前，已开发出多种饮料酒中乙醇的检测方法，如定量核磁共振氢谱法[6]、静态顶空气相色谱-质谱内标法[7]、激光拉曼光谱法[8]、近红外光谱法[9]、酒精计法[10]、荧光光度法[11]等。但是这些检测方法大多需要大型且昂贵的检测设备和专业的技术人员，从而限制了它们在常规环境中的应用。相比之下，可视化检测方式的最大优点是将检测结果直观呈现在使用者眼前，通过颜色变化大体确定靶标的存在与否或靶标量的多少，这种可视化检测方式可以使没有任何操作经验的人员也能够轻松完成检测并得到结果。

PDA由共轭二乙炔单体在254 nm紫外光下发生1,4-加成反应聚合得到[12]，聚合过程不需要任何催化剂或者引发剂。两亲性的二乙炔单体具有疏水尾基和亲水端基，通过简单的制备程序，在水溶液中可以自组装得到囊泡结构[13]，其球状结构具有很好的仿生特性[14]，且用量容易控制，因此适合作为检测工具。在外界刺激如温度[15-16]、pH[17-18]和配体-受体相互作用[19-20]等条件的诱导下，PDA囊泡会表现出由蓝色到红色的颜色变化。颜色转变的程度可用CR值定量表示，CR值越大表明颜色转变程度越高[12]。并且由于部分二乙炔单体具有亲水且易于修饰的端基，可以将功能性基团引入PDA，赋予PDA囊泡特异性的检测能力和更显著的比色响应[21]。由于上述特性，PDA作为检测靶标时的传感器受到越来越多的关注，例如Jannah等[22]开发了用于检测尿素酶的PDA囊泡传感器；Li等[23]利用PDA囊泡开发了用于检测鱼肉组胺的实时监测试纸条；Yang等[24]利用荧光素化的PDA识别两种手性赖氨酸。

作者利用仅添加两种组分且无需经过复杂化学合成路径的PDA囊泡，测定了饮料酒中乙醇的体积分数，并使整个检测过程更加快捷、方便，颜色对比较为明显，实现了饮料酒中乙醇的可视化检测。

1 材料与方法

1.1 材料与试剂

10,12-二十五碳二炔酸（10,12-pentacosadiynoic acid，PCDA）：美国Sigma公司；二肉豆蔻酰磷脂酰胆碱（1,2-dimyristoyl-*sn*-glycero-3-phosphocholine，DMPC）：百灵威科技有限公司；三氯甲烷、无水乙醇：国药集团化学试剂有限公司；市售饮料酒（根据乙醇体积分数的不同编号为1、2、3、4、5）：无锡当地超市。

1.2 仪器与设备

旋转蒸发器：RE-52AA型，上海亚荣生化仪器厂；纳米粒度仪：ZEN3700型，英国马尔文仪器有限公司；Zeta电位分析仪：ZEN3700型，英国马尔文仪器有限公司；透射式电子显微镜（transmission electron microscope，TEM）：JEM-2100型，日本日立株式会社；紫外可见分光光度仪：UH5300型，日本日立株式会社；分析天平：TG-328A型，梅特勒-托利多公司；超声细胞粉碎机：SCIENTZ-IID型，宁波新芝生物技术研究所；超声波清洗机：UC-6型，上海泰坦科技股份有限公司；超纯水机：OKP-S230D型，上海涞科实业发展有限公司；多功能酶标仪：Synergy14型，美国伯腾仪器有限公司。

1.3 方法

1.3.1 PDA囊泡的合成

PDA囊泡的合成参照文献[23]中的方法并稍加改动。PCDA与DMPC以不同的摩尔比混合后，放入装有三氯甲烷的圆底烧瓶中，在黑暗中搅拌2 h左右使其充分溶解。溶解后，在30 ℃的真空条件下使用旋转蒸发器去除三氯甲烷，加入20 mL超纯水后使用超声清洗机超声1 min，使烧瓶内壁的薄膜溶解并分散。使用超声细胞粉碎机在80 ℃下分散混合液体20 min，所得溶液经滤膜过滤后在4 ℃冰箱中储存过夜。之后取出囊泡溶液并在室温下使用254 nm紫外光照射，通过不同时间的聚合得到蓝色的PDA囊泡。

1.3.2 PDA囊泡的表征

使用纳米粒度仪及Zeta电位分析仪检测囊泡的粒径分散程度、平均粒径以及紫外交联前后PDA囊泡电势的变化。通过TEM表征PDA囊泡的形态结构及平均粒径。通过多功能酶标仪检测交联前后PDA囊泡的紫外吸收光谱以及特征吸收峰的出现情况。

1.3.3 PDA囊泡用于乙醇标准样品检测

取制备好的PDA囊泡于离心管中，加入不同体积分数的乙醇溶液，用于探究囊泡与乙醇溶液

的最优反应体积比。为了实现PDA囊泡的最佳总体检测性能，后续根据筛选的最优反应比对试验中的部分条件进行优化。在检测乙醇标准样品并绘制标准曲线的过程中，使用多功能酶标仪测定吸光度，所有测定重复3次，将测得的数据按公式(1)~(3)计算得到CR值，从而定量表示PDA囊泡的变色程度[25]。同时，通过肉眼也可观察到PDA囊泡由蓝色到红色的渐变过程，以实现对乙醇的裸眼检测。

$$P_{B0}=\frac{A_{blue}}{A_{blue}+A_{red}} \quad (1)$$

$$P_{Bf}=\frac{A_{blue}}{A_{blue}+A_{red}} \quad (2)$$

$$J_{CR}=\frac{P_{B0}-P_{Bf}}{P_{B0}}\times 100\% \quad (3)$$

式中：

A_{blue}——囊泡体系在紫外可见光谱中蓝色部分（波长为620~640 nm）的吸光度；

A_{red}——囊泡体系在紫外可见光谱中红色部分（波长为490~540 nm）的吸光度；

P_{B0}——囊泡在初始状态下$A_{blue}/(A_{blue}+A_{red})$的值；

P_{Bf}——囊泡在体系颜色发生改变后$A_{blue}/(A_{blue}+A_{red})$的值；

J_{CR}——比色响应值，%。

1.3.4 PDA囊泡用于实际酒样检测

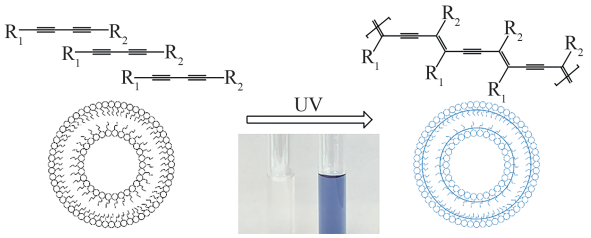
为了进一步验证PDA囊泡在实际应用中的性能，购买了5种市售饮料酒。使用试验中合成的PDA囊泡对这些饮料酒的乙醇体积分数进行检测，计算CR值并带入线性方程计算，将检测结果与采用酒精计检测的数值比较。所有测定重复3次，计算相对标准偏差。

2 结果与讨论

2.1 PDA囊泡的合成与表征

2.1.1 PDA囊泡的合成

两亲性的单体PCDA具有特殊的结构。理论上来说PCDA单体之间可能存在氢键、静电相互作用和π-π堆积等非共价相互作用[26]，PCDA单体在溶液中发生的自组装依赖于这些非共价相互作用。作者首先通过体积法[27]使PCDA单体发生自组装，从而在水性溶液中制备了无色的PDA囊泡。这种结构中PCDA单体的紧密堆积使固相聚合（单体的排列满足一定的结构参数，即相邻单体的距离约为0.5 nm，单体杆和填充轴之间的夹角约为45°）[28]的发生成为可能。无色的PDA囊泡经过254 nm紫外光的照射后发生1,4-加成反应，固相聚合后得到了蓝色的PDA囊泡，同时通过肉眼可见溶液颜色由无色变为蓝色（见图1）。在PDA囊泡中，由于单体之间通过横向交联的聚合物链连接，膜的流动性会受到限制，所以在检测中会添加其他物质来制备PDA囊泡。研究证明，在PDA囊泡的制备过程中适当添加脂质（如DMPC）可以使PDA囊泡的物理性质发生一定变化，从而增强PDA囊泡传感的灵敏度和稳定性，提高囊泡与分子间的作用力[29-30]。



R_1表示—$CH_3(CH_2)_{11}$；R_2表示—$(CH_2)_8COOH$。

图1 1,4-加成反应前后PDA囊泡的结构式和示意图

Fig. 1 Structural formula and schematic diagram of PDA vesicles before and after 1,4-addition reaction

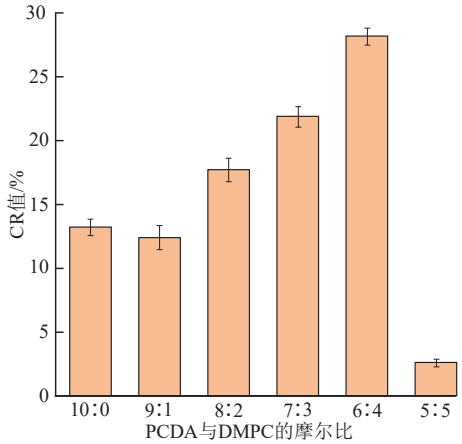
2.1.2 组分摩尔比对PDA囊泡检测效果的影响

该试验制备的PDA囊泡含有PCDA和DMPC两种组分。两种组分添加时的摩尔比不同会导致囊泡对乙醇的检测效果产生一定差异，所以需要探究制备囊泡所用两种组分的最适摩尔比。首先，在一定温度下将PCDA与DMPC以不同的摩尔比（10∶0、9∶1、8∶2、7∶3、6∶4、5∶5）混合，经过超声溶解和254 nm紫外交联，制备出PDA囊泡（浓度为1 mmol/L）。如图2(a)所示，使用体积分数50%的乙醇溶液进行测试，当PCDA与DMPC摩尔比为6∶4时，PDA囊泡显色效果最好且具有最高的CR值。当PCDA的添加量小于或等于DMPC的添加量（如PCDA与DMPC摩尔比为5∶5）时，经过超声溶解、紫外交联后的PDA囊泡溶液用肉眼观察基本为无色，并不具备显色效果。

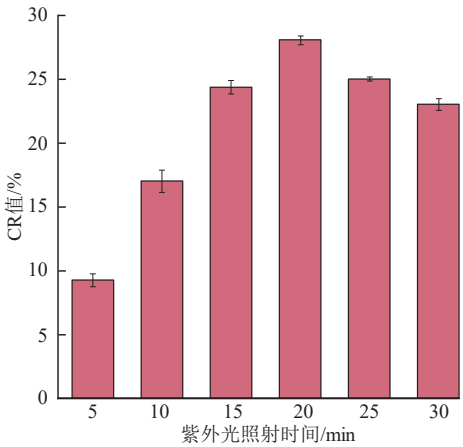
2.1.3 紫外光照射时间对PDA囊泡检测效果的影响

PDA囊泡在254 nm紫外光的照射下会发生1,4-加成反应，随着紫外光照射时间延长，PDA囊泡溶液的颜色由无色逐渐变为蓝色。由图2(b)可

以看出，当聚合时间为20 min时，与体积分数50%的乙醇溶液反应后，PDA囊泡溶液的颜色转变程度最大，具有最高的CR值。继续延长聚合时间，PDA囊泡会发生过度聚合，对显色效果产生不利影响，故选择20 min作为PDA囊泡的紫外光照射时间。



(a) PCDA与DMPC摩尔比对CR值的影响



(b) 紫外光照射时间对CR值的影响

图2　不同反应条件制备的PDA囊泡与乙醇溶液反应的CR值

Fig. 2　CR value of PDA vesicles produced under different experimental conditions upon reaction with ethanol solutions

2.1.4　PDA囊泡结构的表征

通过动态光散射法、紫外可见光谱、Zeta电位和透射电子显微镜来表征制备的PDA囊泡结构。首先采用动态光散射法对囊泡的平均粒径进行表征，结果见图3(a)。动态光散射的测定结果表明，合成的PDA囊泡平均粒径为78 nm。通过紫外可见光谱分析PDA囊泡交联前后紫外吸收峰的产生和变化情况，结果见图3(b)。未经紫外光照射的PDA囊泡没有出现特征吸收峰，而经过254 nm紫外光照射后的蓝色PDA囊泡在640 nm处有最大吸光度，在590 nm处有一肩峰，这与文献报道的结果基本一致[12]。聚合前后PDA囊泡的Zeta电位变化情况如图3(c)所示，PDA囊泡中羧基的存在使紫外聚合前后囊泡均带负电，聚合前Zeta电位为−11.67 mV，聚合后Zeta电位为−13.27 mV。最后，采用TEM观察PDA囊泡的粒径大小和外形结构，结果如图3(d)所示。合成的囊泡大体呈泡状结构。在DMPC加入后，PCDA和DMPC形成了各自的结构区域而不是互相融合为一体。此外，由于DMPC散布在整个脂质体中，对PDA囊泡的整体结构影响不大。

2.2　PDA囊泡用于乙醇的检测

2.2.1　PDA囊泡检测乙醇的应用原理

PDA囊泡中基团的相互作用强度是决定颜色转变行为的关键因素。如图4(a)所示，乙醇的加入形成扰动，影响了囊泡表面区域附近头基和烷基侧链的组织。同时，乙醇的渗透也起着重要的作用，乙醇渗透进PDA囊泡层，最终打破头基之间的氢键，削弱烷基侧链之间的相互作用并引起了片段重排[31]，使PDA囊泡溶液发生由蓝变红的颜色变化，如图4(b)所示，这种变化通过肉眼即可识别。

2.2.2　加样量对PDA囊泡检测效果的影响

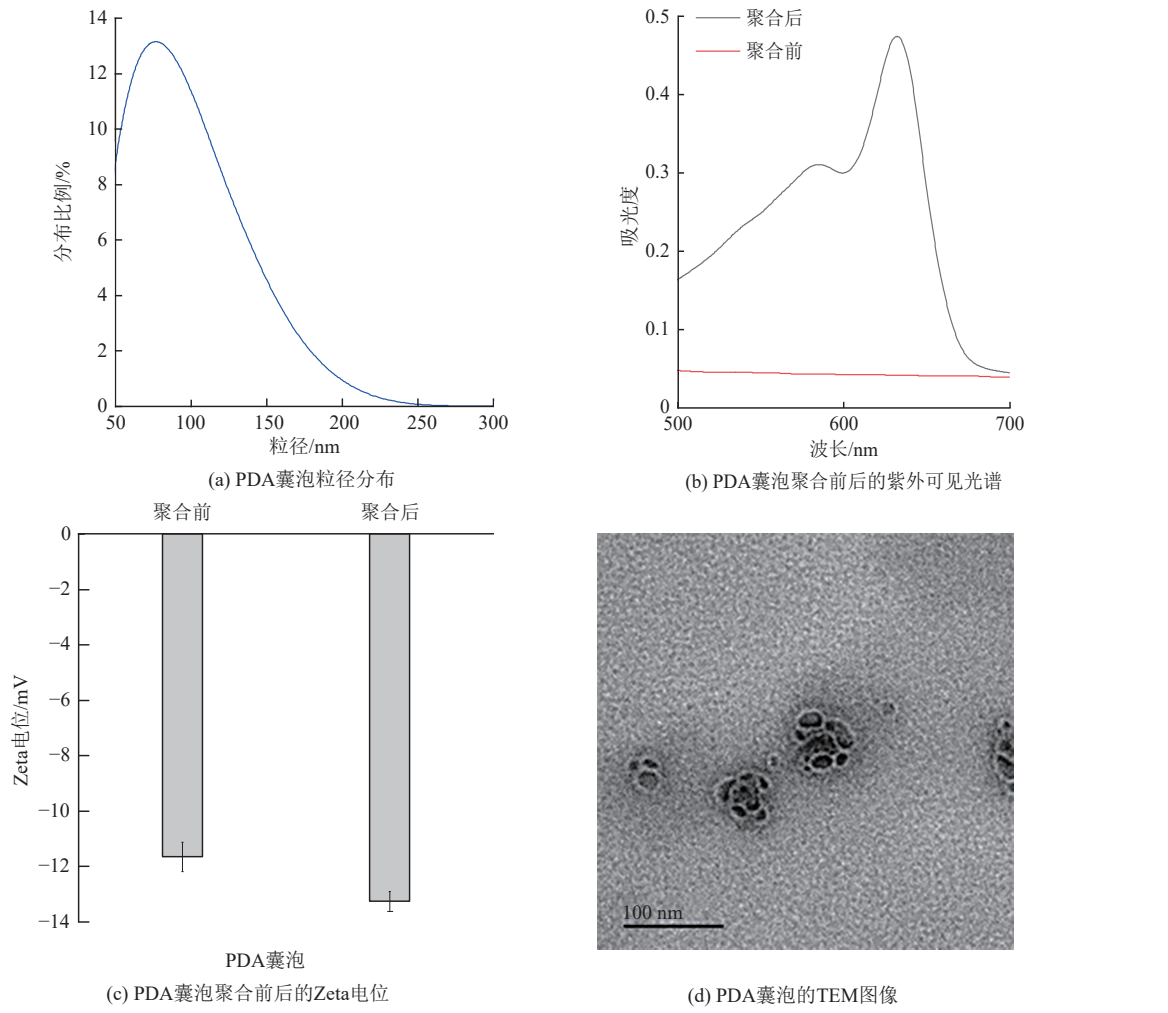
在检测过程中，PDA囊泡溶液与乙醇溶液的体积比不同也会对显色产生一定影响。通过观察加入不同体积乙醇溶液(体积分数50%)后，溶液的颜色变化及其紫外吸收光谱的变化，结合CR值的计算，分析加样量对PDA囊泡检测效果的影响。结果如图5(a)所示，当PDA囊泡溶液与乙醇溶液体积比为1∶4时具有最佳显色效果。故确定PDA囊泡溶液与乙醇溶液的体积比为1∶4。

2.2.3　反应时间对PDA囊泡检测效果的影响

考察PDA囊泡溶液中加入体积分数50%乙醇溶液后的响应时间。如图5(b)所示，加入乙醇溶液后的3 min内，反应体系的CR值随着时间推移逐渐增大，到第5 min时，CR值达到了28%。5 min后，CR值的增长逐渐趋于稳定，整个体系达到饱和。结果表明，所构建的PDA囊泡对于乙醇具有较快的响应时间。

2.2.4　PDA囊泡对乙醇的检测

在最优试验条件下，通过加入不同体积分数

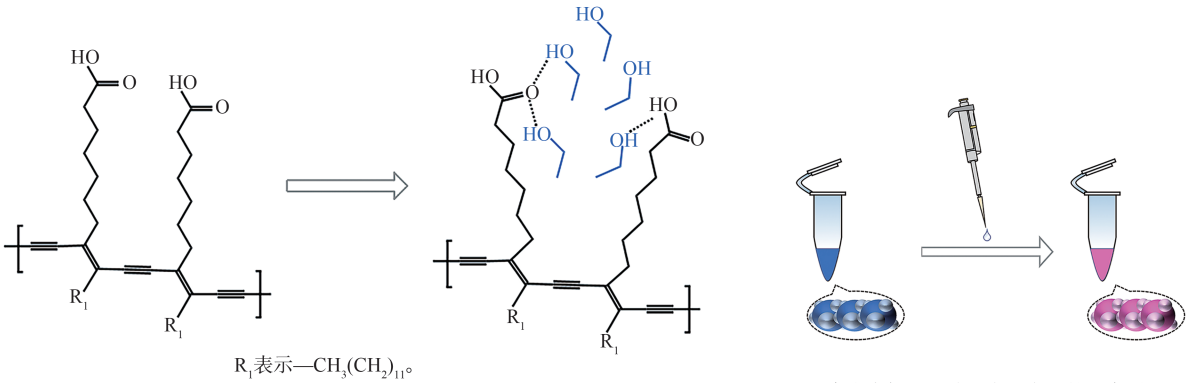


(a) PDA囊泡粒径分布　(b) PDA囊泡聚合前后的紫外可见光谱

(c) PDA囊泡聚合前后的Zeta电位　(d) PDA囊泡的TEM图像

图 3　PDA 囊泡的表征

Fig. 3　Characterization of PDA vesicles



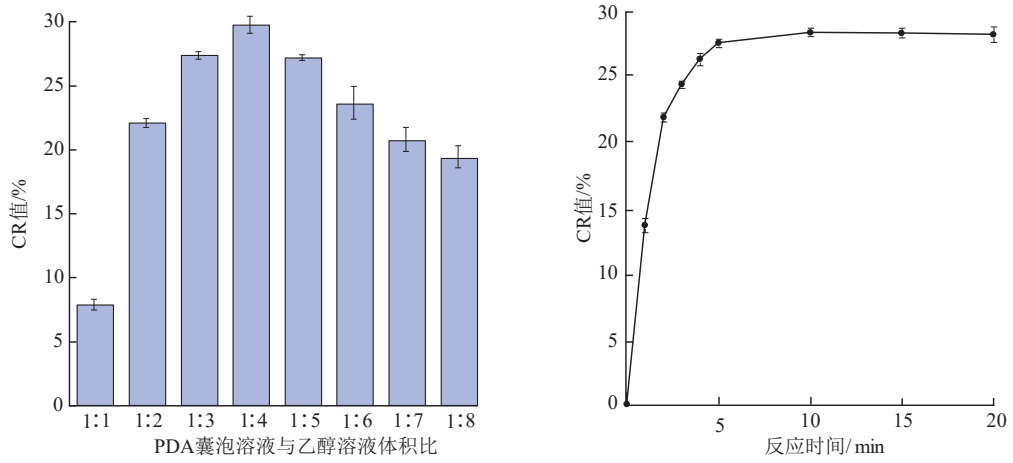
R_1表示—$CH_3(CH_2)_{11}$。

(a) 乙醇对PDA囊泡的作用　(b) PDA囊泡中加入乙醇后由蓝变红的示意图

图 4　PDA 囊泡与乙醇反应的原理

Fig. 4　Schematic diagram depicting the mechanism of PDA vesicles reacting with ethanol

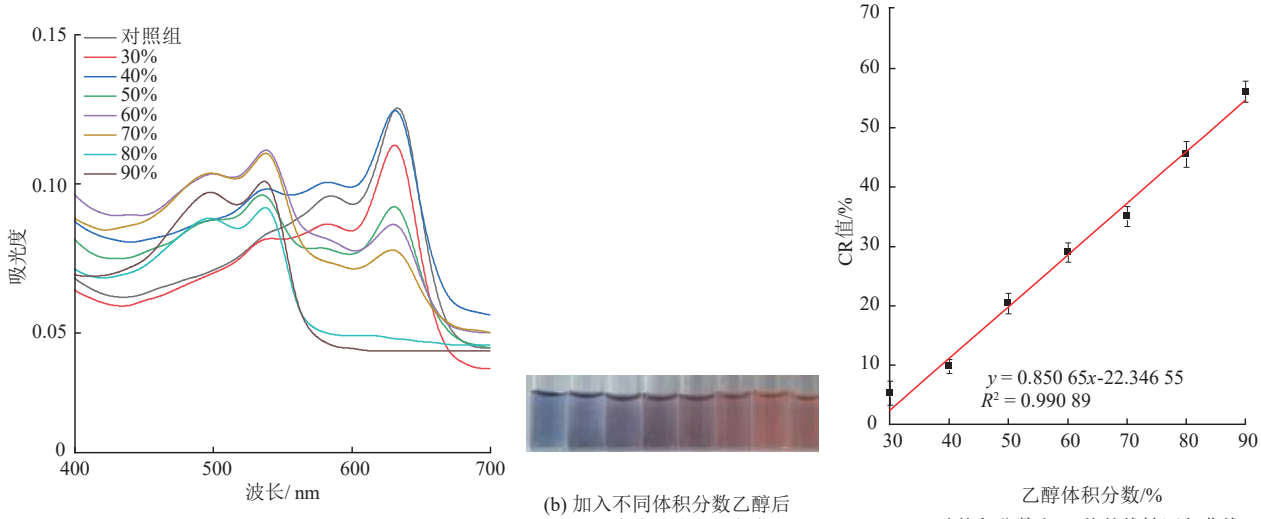
的乙醇标准品来评价所制备 PDA 囊泡的性能。将不同体积分数的乙醇溶液加到 PDA 囊泡溶液中进行显色试验，得到了乙醇体积分数与 CR 值变化的关系。如图 6 所示，随着加入的乙醇体积分数逐渐增大，体系出现肉眼可见的由蓝色逐渐变为红色的变化。对体系进行紫外可见光谱的测定，发现 PDA 囊泡的紫外吸收光谱在 540 nm 处和 640 nm 处均发生变化，这是因为乙醇的加入对



(a) PDA囊泡溶液与不同体积乙醇溶液反应的CR值　(b) 加入乙醇溶液后CR值随反应时间的变化趋势

图 5　试验条件的优化

Fig. 5　Optimization of experimental conditions



(a) PDA囊泡的紫外可见光谱　(b) 加入不同体积分数乙醇后PDA囊泡溶液的颜色变化　(c) 乙醇体积分数和CR值的线性回归曲线

图 6　PDA 囊泡对乙醇体积分数的检测

Fig. 6　Detection of ethanol volume fraction using PDA vesicles

PDA 囊泡形成了扰动。PDA 囊泡的 CR 值与体积分数 30%~90% 的乙醇溶液具有线性关系，线性回归方程为 y=0.850 65x−22.346 55（R^2=0.990 89），其中 y 代表 PDA 囊泡的 CR 值，x 代表乙醇体积分数。

2.3　PDA 囊泡的稳定性

将制备的 PDA 囊泡溶液储存在密封的棕色瓶中，放入 4 ℃冰箱避光保存，考察其储存时间。如图 7 所示，在 4 ℃条件下，比色条可稳定储存 18 d 左右，且仍然具有良好的比色功能。当储存到第 21 天时，PDA 囊泡溶液开始变质，显色效果出现一定程度的降低。因此为了延长保质期，PDA 囊泡溶液应该避光密封并保存在 4 ℃冰箱中，以保持最优的显色效果。

2.4　实际样品的检测

通过测试市售饮料酒的乙醇体积分数来评估 PDA 囊泡的潜在适用性。使用制备的囊泡对 5 种乙醇体积分数的酒样进行测定，所测数据代入拟合方程计算，得到的乙醇体积分数如图 8 所示。同时使用酒精计测定市售酒样的乙醇体积分数并作为对照[32]。通过对比发现，使用 PDA 囊泡测得的乙醇体积分数与国标方法测得的结果均比较准确。结果的相对标准偏差最大为 2.23%，证明 PDA 囊泡在检测市售饮料酒的乙醇体积分数时具有一定的适用性。

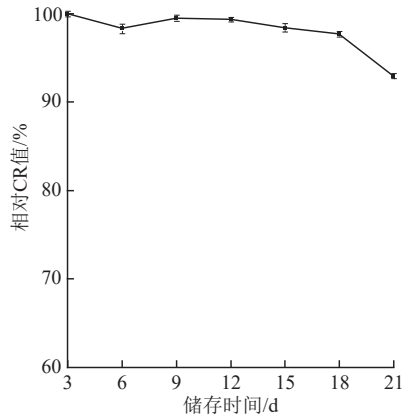


图 7 相对 CR 值随储存时间的变化趋势

Fig. 7 Variation in relative colorimetric response value over storage time

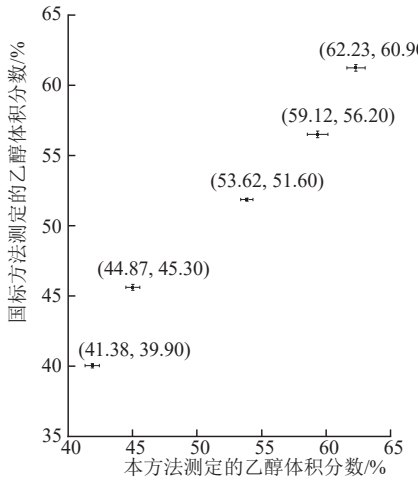


图 8 两种方法检测市售饮料酒中乙醇体积分数的比较

Fig. 8 Comparison of ethanol volume fraction detection in commercial alcoholic beverages using two methods

3 结论

作者合成了适用于检测饮料酒中乙醇体积分数的 PDA 囊泡。通过对囊泡合成过程中组分添加摩尔比、紫外光照射时间和其他条件的优化，制备出了适用于检测的 PDA 囊泡并实现了对乙醇标准品中乙醇体积分数的测定。结果表明，PDA 囊泡的 CR 值与体积分数 30%~90% 的乙醇有线性关系。在检测过程中使用裸眼便可快速得出检测结果，实现了可视化检测，能够便于更多的消费者进行检测。进一步对实际酒样进行测定，以验证 PDA 囊泡在实际样品检测中的准确性和适用性。结果表明，PDA 囊泡在鉴别酒样是否存在质量问题、实现饮料酒中乙醇体积分数的快速检测等方面具有一定的应用价值。通过该 PDA 囊泡可视化检测乙醇体积分数的方法为后续开发乙醇快速检测试纸条提供了一定参考。

参考文献

[1] 国家市场监督管理总局，国家标准化管理委员会. 饮料酒术语和分类：GB/T 17204—2021[S]. 北京：中国标准出版社，2021.

[2] 孙宝国，黄明泉，王娟. 白酒风味化学与健康功效研究进展[J]. 中国食品学报，2021，21(5)：1-13.
SUN B G，HUANG M Q，WANG J. Research progress on flavor chemistry and healthy function of Baijiu[J]. Journal of Chinese Institute of Food Science and Technology，2021，21(5)：1-13.(in Chinese)

[3] 关媛媛，于宁. 过量饮酒与健康[J]. 健康研究，2010，30(3)：223-225，240.
GUAN Y Y，YU N. Overcomsumption of alcohol and health[J]. Health Research，2010，30(3)：223-225，240.(in Chinese)

[4] 李明瑕，刘春凤，王壬，等. 黄桃果酒发酵工艺优化及香气成分分析[J]. 食品与生物技术学报，2021，40(10)：39-49.
LI M X，LIU C F，WANG R，et al. Optimization of fermentation process and analysis of aroma components of yellow peach wine[J]. Journal of Food Science and Biotechnology，2021，40(10)：39-49.(in Chinese)

[5] 李国辉，高红波，吕志远，等. 酒精度快速测定仪测定饮料酒酒精度[J]. 食品与发酵工业，2019，45(1)：197-201.
LI G H，GAO H B，LYU Z Y，et al. A rapid alcohol tester for determining alcoholic strengths of alcoholic beverages[J]. Food and Fermentation Industries，2019，45(1)：197-201.(in Chinese)

[6] 杨星，曾新安. 温度对模拟白酒体系氢键缔合影响分析[J]. 食品与发酵工业，2011，37(3)：46-49.
YANG X，ZENG X A. ^{1}H-NMR spectrum analysis on temperature dependence of spirit simulation[J]. Food and Fermentation Industries，2011，37(3)：46-49.(in Chinese)

[7] 程凡，张温清，李赛，等. 静态顶空气相色谱-质谱内标法快速测定酒醅中乙醇含量[J]. 酿酒科技，2020(7)：79-82.
CHENG F，ZHANG W Q，LI S，et al. Rapid determination of ethanol content in fermented grains by static headspace GC-MS[J]. Liquor-Making Science & Technology，2020(7)：79-82.(in Chinese)

[8] 刘文涵，杨未，吴小琼，等. 激光拉曼光谱内标法直接测定甲醇浓度[J]. 分析化学，2007，35(10)：1503-1505.
LIU W H，YANG W，WU X Q，et al. Direct quantitative determination of methanol by laser Raman spectrometry with internal standard method[J]. Chinese Journal of Analytical Chemistry，2007，35(10)：1503-1505.(in Chinese)

[9] HU L Q，YIN C L，MA S，et al. Rapid detection of three quality parameters and classification of wine based on Vis-NIR spectroscopy with wavelength selection by ACO and CARS algo-

rithms[J]. Spectrochimica Acta Part A：Molecular and Biomolecular Spectroscopy，2018，205：574-581.

[10] 宋成林. 不确定因素影响下酒精计法测酒中乙醇浓度的研究[J]. 酿酒科技，2022(1)：124-129.
SONG C L. Measurement of alcohol concentration in Baijiu by alcohol meter under the influence of uncertain factors[J]. Liquor-Making Science & Technology，2022(1)：124-129.(in Chinese)

[11] 詹心琪，李东辉，朱庆枝，等. 四磺基铝酞菁-阳离子表面活性剂体系应用于白酒中乙醇含量的测定[J]. 分析化学，2001，29(6)：710-712.
ZHAN X Q，LI D H，ZHU Q Z，et al. Tetrasubstituted sulphonated aluminum phthalocyanine-cationic surfactant system for fluorimetric determination of ethanol in alcoholic beverage[J]. Chinese Journal of Analytical Chemistry，2001，29(6)：710-712.(in Chinese)

[12] REPPY M A，PINDZOLA B A. Biosensing with polydiacetylene materials：structures，optical properties and applications[J]. Chemical Communications，2007(42)：4317-4338.

[13] CHO E，HU Y L，CHOI Y，et al. A dimyristoyl phosphatidylcholine/polydiacetylene biomimetic assembly for the selective screening of progesterone[J]. Journal of Industrial and Engineering Chemistry，2018，63：288-295.

[14] 王雪靖，穆韡，韩晓军.磷脂囊泡阵列的制备及其在生物分析领域中的应用[J].分析化学，2019，47(8)：1134-1144.
WANG X J，MU W，HAN X J. Preparation methods for phospholipid vesicle arrays and their applications in biological analysis[J]. Chinese Journal of Analytical Chemistry，2019，47(8)：1134-1144.

[15] SUN X M，CHEN T，HUANG S Q，et al. Chromatic polydiacetylene with novel sensitivity[J]. Chemical Society Reviews，2010，39(11)：4244-4257.

[16] GOU M L，GUO G，ZHANG J，et al. Time-temperature chromatic sensor based on polydiacetylene (PDA) vesicle and amphiphilic copolymer[J]. Sensors and Actuators B：Chemical，2010，150(1)：406-411.

[17] LEE W，LEE D，KIM J Y，et al. Imidazole and triazole head group-containing polydiacetylenes for colorimetric monitoring of pH and detecting HCl gas[J]. Materials Chemistry Frontiers，2018，2(2)：291-295.

[18] WESTON M，KUCHEL R P，CIFTCI M，et al. A polydiacetylene-based colorimetric sensor as an active use-by date indicator for milk[J]. Journal of Colloid and Interface Science，2020，572：31-38.

[19] WANG C G，MA Z F. Colorimetric detection of oligonucleotides using a polydiacetylene vesicle sensor[J]. Analytical and Bioanalytical Chemistry，2005，382(7)：1708-1710.

[20] KANG D H，JUNG H S，KIM K，et al. Mussel-inspired universal bioconjugation of polydiacetylene liposome for droplet-array biosensors[J]. ACS Applied Materials & Interfaces，2017，9(48)：42210-42216.

[21] 郝瑜佳，朱光明. 聚二乙炔囊泡的制备及其在医疗检测领域的应用[J]. 分析化学，2020，48(2)：164-173.
HAO Y J，ZHU G M. Advances in fabrication of polydiacetylene vesicles and their applications in medical detection[J]. Chinese Journal of Analytical Chemistry，2020，48(2)：164-173.(in Chinese)

[22] JANNAH F，KIM J M. pH-Sensitive colorimetric polydiacetylene vesicles for urease sensing[J]. Dyes and Pigments，2019，169：15-21.

[23] LI Q F，REN S Y，PENG Y，et al. A colorimetric strip for rapid detection and real-time monitoring of histamine in fish based on self-assembled polydiacetylene vesicles[J]. Analytical Chemistry，2020，92(1)：1611-1617.

[24] YANG G，JI J，ZHANG S Y，et al. Colorimetric chiral discrimination of lysine enantiomers and configurable logic gate operation based on fluorescein-functionalized polydiacetylene vesicles[J]. Analytical Methods，2020，12(5)：673-678.

[25] ZHOU C G，YOU T，JANG H，et al. Aptamer-conjugated polydiacetylene colorimetric paper chip for the detection of *Bacillus thuringiensis* spores[J]. Sensors，2020，20(11)：3124.

[26] XU Y Y，FU S Y，LIU F Y，et al. Multi-stimuli-responsiveness of a novel polydiacetylene-based supramolecular gel[J]. Soft Matter，2018，14(39)：8044-8050.

[27] NGUYEN L H，NAFICY S，MCCONCHIE R，et al. Polydiacetylene-based sensors to detect food spoilage at low temperatures[J]. Journal of Materials Chemistry C，2019，7(7)：1919-1926.

[28] CHO E，JUNG S. Biomolecule-functionalized smart polydiacetylene for biomedical and environmental sensing[J]. Molecules，2018，23(1)：107.

[29] THET N T，JAMIESON W D，LAABEI M，et al. Photopolymerization of polydiacetylene in hybrid liposomes：effect of polymerization on stability and response to pathogenic bacterial toxins[J]. The Journal of Physical Chemistry B，2014，118(20)：5418-5427.

[30] KIM K W，CHOI H，LEE G S，et al. Effect of phospholipid insertion on arrayed polydiacetylene biosensors[J]. Colloids and Surfaces B：Biointerfaces，2008，66(2)：213-217.

[31] CHAROENTHAI N，PATTANATORNCHAI T，WACHARASINDHU S，et al. Roles of head group architecture and side chain length on colorimetric response of polydiacetylene vesicles to temperature，ethanol and pH[J]. Journal of Colloid and Interface Science，2011，360(2)：565-573.

[32] 中华人民共和国国家卫生和计划生育委员会. 酒中乙醇浓度的测定：GB 5009.225—2016[S]. 北京：中国标准出版社，2017.

（责任编辑：史润东东）