

Research Progress on Purification Methods of Carbon Dots

Jie Liu, Qin Ran, Ying Peng, Chunli Xu, Enyu Liu, Xiaodong Su*

College of Chemistry and Chemical Engineering, Chongqing University of Science and Technology, Chongqing
Email: 407394695@qq.com, *155194861@qq.com

Received: Dec. 31st, 2019; accepted: Jan. 27th, 2020; published: Feb. 3rd, 2020

Abstract

In recent years, as a new fluorescent nanomaterial, carbon dots have become one of the popular studied by researchers because of their excellent physical and chemical properties, and are widely used in sensors, catalysis, degradation, and bioimaging, etc. The characteristics of the carbon dots are not only affected by the position of the emitted wave, but also closely related to the particle size. To date, most researches focus on the preparation methods and applied research of carbon dots, while the purification of carbon dots is rarely reported comprehensively. This paper will review the purification methods of carbon dots in recent years and provide reference for the purification process of carbon dots. It is of great significance for the further research and application of carbon dots.

Keywords

Carbon Dots, Purification, Research Progress

碳点的纯化方法研究进展

刘洁, 冉琴, 彭英, 徐春丽, 刘恩余, 苏小东*

重庆科技学院化学化工学院, 重庆
Email: 407394695@qq.com, *155194861@qq.com

收稿日期: 2019年12月31日; 录用日期: 2020年1月27日; 发布日期: 2020年2月3日

摘要

近几年, 碳点作为一种新型荧光纳米材料, 由于其优良的物理化学和光学性能成为研究者们研究的热点材料之一, 并被应用于传感器、催化、降解、生物成像等方面。碳点的特性不仅受发射波位置的影响,

*通讯作者。

也与其粒径的大小存在密切的联系。目前大多数研究焦点都在碳点制备方法和应用研究上,而碳点的纯化问题却很少有全面的报道。本文将针对近些年碳点的纯化方法进行综述,为碳点的纯化过程提供参考,对于碳点的进一步研究和应用具有非常重要的意义。

关键词

碳点, 纯化方法, 研究进展

Copyright © 2020 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

碳点作为一种重要的荧光碳纳米材料,自2004年被 Xu 等[1]发现以来,由于其独特的物理化学和光学性能成为了广大学者的研究热点。碳点是一种分散的、集合形状类似球形的新型零维半导体纳米晶体,通常由 C、H、O、N 四种基本元素构成,分子量大约在几千到几万,而粒径一般只有几个纳米。与传统半导体量子点相比,碳点不仅拥有溶解性能优异、导电性好、荧光可调性强、无毒、生物相容性好等优点[2],而且由于其表面含有丰富的官能团(例如氨基、羟基、羧基)易于被不同基团修饰或改性,在生物成像、光电器件、药物运载、催化降解以及环境分析检测等各个领域受到了极大关注[3]。一般来说,碳点的光学性质受其自身的尺寸、形态、组成和结晶度等因素的影响[4],而这些限制条件主要是由原料和制备方法来影响的,但是,在制备碳点的过程中,往往伴随一些有机副产物以及未反应的前驱体,从而影响了碳点光学性质的光致发光。因此,为了保证碳点的发光纯度、检测灵敏度等性能,去除杂质是必不可少的环节。

目前,对碳点的制备方法以及碳点实际应用的研究有很多,如电弧放电法、电化学法、激光消融法、模板法、微波消解合成法、水热法等,都制备得到了碳点并运用到了传感器、生物成像、电化学分析等不同的方面。但是对碳点纯化的方法的研究却很少报道,本文将针对碳点的纯化方法进行综述,以期在今后实验的纯化过程提供参考,同时对于碳点的进一步应用具有非常重要的意义。

2. 碳点的纯化方法

确保碳点具有较窄的尺寸分布,是保证碳点发光纯度的重要途径,对碳点的性质及应用具有十分重要的影响。目前存在的碳点的纯化方法有很多种,主要包括离心过滤法[5]-[16]、透析净化法[17]-[32]、柱层析法[33] [34] [35]、电泳法[36] [37] [38]等。

2.1. 离心过滤法

离心过滤法主要是通过滤纸过滤或者离心等操作将溶液中的大颗粒杂质去除。

张静等[5]以丙三醇为原料,通过微波法一步合成了碳点,利用离心法将其中的大颗粒进行去除,得到的碳点尺寸较大,主要分布在 16.5 nm 处;Zhao 等[6]以蛋黄油为原料制备碳点,通过离心超滤的方法进行纯化,成功的去除了其中的蛋白大分子;郭延柱等[7]以羟乙基纤维素作为碳源,加入不同质量比的氮源掺杂剂,通过水热合成法制备得到深褐色的碳点溶液,用超声波粉碎机进行超声 30 min 后在 10,000 r/min 转速下离心 30 min。为了将掺杂剂等未反应完全的碱溶液除去,对离心后的上清液进行旋转蒸发,

得到纯化的碳点溶液；Yan 等[8]以活性炭为碳源，水热法一步合成碳点，通过过滤除去里面未反应的活性炭和一些大尺寸的分子，然后在 60℃ 下旋转蒸发浓缩到 2 mL，加入 20 mL 的乙醚进行萃取两次，碳点被保留在乙醚中，然后在 40℃ 下旋转蒸发后，重溶在超纯水中，得到纯净的碳点溶液；高宁萧等[9]以豆奶粉为碳源，有机硅烷(AEAPMS)为钝化剂，水热法制备碳点，再通过 d9 中性滤纸进行过滤之后，在 1000 r/min 离心 10 min，取上清液，然后通过静电纺丝技术制备得到均匀、分散性好的碳点荧光纳米纤维；Zhang 等[10]将 0.125 g L-半胱氨酸和 0.5 g 邻苯二胺溶于乙醇溶液中，溶剂热法 220℃ 反应 12 h，将 2 mL 原液加入到 4 mL 氢氧化钠溶液中(1.25 mol/L)，混合溶液在 10,000 r/min 离心 10 min，将沉淀物溶解于乙醇溶液中，0.22 μm 滤膜过滤两次，然后旋转蒸发得到尺寸为 2.97 nm 左右，均匀的橘色/红色碳点，并很好的应用于 pH 传感和生物成像中。

离心过滤的方法由于其简单易操作被广泛地应用于碳点的纯化，然而，碳点的尺寸通常在 10 nm 左右，采用常规的过滤方法，难以达到分离精度要求，因此通常与萃取、旋转蒸发等步骤一起使用。

2.2. 透析净化法

透析净化法主要是将生物大分子样品溶液置入透析袋内，再将透析袋浸入蒸馏水或所需的缓冲液中，利用扩散压的原理，样品溶液中大分子量的生物分子被截留在透析袋内，而盐和小分子物质不断扩散透析到透析袋外，直到透析袋内外两边的浓度达到平衡为止，一般通过考虑原料的分子量来选取不同截留分子量大小的透析袋。

Chen 等[18]以 C60 为碳源，采用水热合成法合成了碳点，并且通过透析袋对碳点进行了长达 7 天时间的纯化，得到了纯度较高的碳点；贾晶等[19]以对苯二胺和柠檬酸为原料，在水热反应釜中 180℃ 下反应 4 小时，然后将获得的 N-CDs 溶液以 10,000 r/min 离心 10 min，弃沉淀，通过连续透析(透析袋截留分子量 500 Da) 24 h 进一步纯化 N-CDs 水溶液，以除去其它小分子，获得了具有 1.62 nm 左右的橘色荧光碳点，并很好的运用于亚硝酸盐的检测中；王诗琪等[20]以 ATA 为原料，通过加入不同的钝化剂，微波法一步制备碳点，通过 1000 Da 的透析袋透析得到目标碳点的尺寸为 5~8 nm，并用作探针去检测铁离子，其检出限约为 1.01 μmol/L；徐孝林等[21]以柠檬酸钠为碳源，三聚氰胺为氮掺杂剂，利用水热合成法得到了无色的碳点溶液，用 0.22 μm 的滤膜对产物进行减压抽滤，得到粗产品，随后对其进行旋蒸浓缩，在 5000 r/min 的转速下对浓缩液离心处理。取上清液，加入无水乙醇，在同样的转速下离心 10 min，弃去上清液，下层固体产物用蒸馏水分散，用 1kDa 的透析袋对其进行透析，每间隔 6 小时换一次水，透析 24 小时，得到分散性好，尺寸十分均匀的碳点；Zhang 等[22]以 L-抗坏血酸为碳源，水和乙醇的混合溶液为溶剂，采用水热合成法，在 180℃ 下反应 4 小时，然后经过萃取、透析等方法进行纯化，得到粒径约 2 nm 的荧光碳点，其荧光量子产量约为 6.79%。

将透析袋分离技术作为一种纯化手段，具有分离效率高、操作简便、能耗低等特点，但是存在成本昂贵，不能分离大纳米结构副产物等缺点，又由于碳点具有较好的亲水性，一般要进行 24 小时以上透析除去杂质，消耗大量的时间和蒸馏水，不具有经济性。

2.3. 柱层析法

柱层析法的主要是根据物质在硅胶上的吸附力不同来达到各组分分离的目的。

Barman 等[33]通过超声法合成碳点，并通过柱层析法分离纯化，得到了四种不同尺寸的碳量子点。Apostolos K 等[34]提出了一种基于固相萃取的简单有效的得到紫色，蓝色，绿色和黄色发光 C 点的纯化方法，使用氧化铝作为固相，然后通过适当的有机溶剂从氧化铝中进行萃取，从而达到与副产物和未反应的有机物分离的效果。Vanessa 等[35]以柠檬酸和半胱氨酸为原料，通过水热合成法一锅合成碳点溶液。

然后通过以平均孔径 15 nm, 粒径为 37~74 μm 的硅胶固定相的熔融玻璃料柱, 以乙腈/水(1:1)为洗脱液进行柱色谱分离, 可以鉴定出自由漂浮的分子荧光团、高荧光碳点、低荧光碳颗粒三种不同的荧光物质。

柱层析法可以实现碳点的分离和纯化, 得到目标碳点。但是与其它方法相比, 该方法具有操作过程烦琐, 分离效率低, 难以实现连续化操作, 也难以在短时间内提供高纯度的碳点。

2.4. 电泳法

电泳法是通过不同带电粒子所带电荷不同, 或虽所带电荷相同但荷质比不同, 在同一电场中电泳, 经一定时间后, 由于移动距离不同来实现相互分离。

Liu 等[36]首次以蜡烛灰为碳源开辟了合成碳点的新方法。他们将收集的蜡烛灰与 5 mol/L 的 HNO_3 混合, 加热回流 12 小时, 得到均匀的黑色悬浊液, 再通过离心、中和、透析、凝胶电泳分离一系列处理, 经过变性的聚丙烯酰胺凝胶电泳后, 得到发射不同颜色荧光的碳点, 且在相同激发下, 随着碳点粒径的增大, 发射波长逐渐红移(如图 1 所示), 制得的荧光碳点粒径均 $< 2 \text{ nm}$ 。Zhou 等[37]以烟灰为碳源, 用化学氧化法制备了碳点, 采用毛细管电泳法对其进行分离和纯化。Liu 等[38]以蜡烛灰为碳源制备了碳点, 通过琼脂糖凝胶电泳法将三种尺寸不同且具有不同荧光特性的组分分离出来, 从而完成分离纯化的目的。

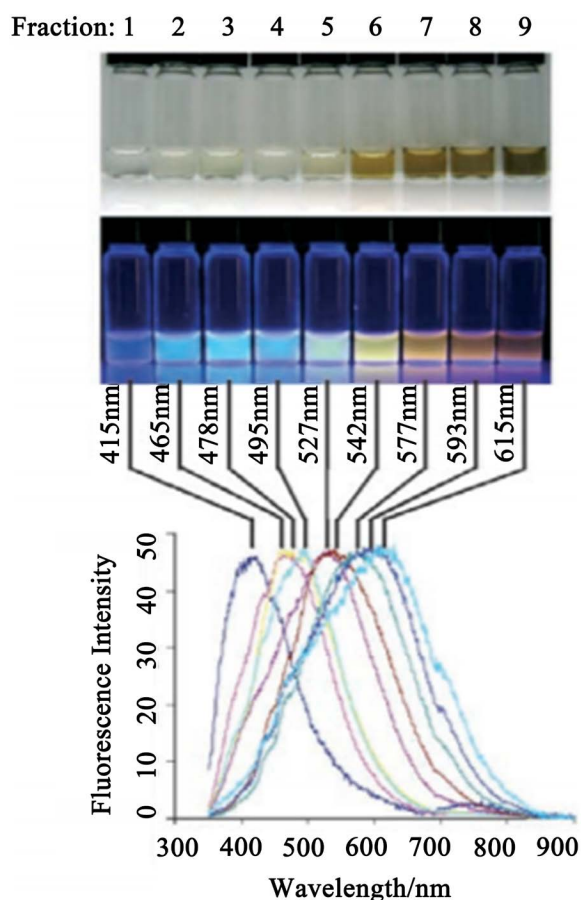


Figure 1. Optical characterization of the purified CNPs [36]

图 1. 纯化的 CNP 的光学表征[36]

电泳法较离心过滤法、透析膜法来说相对比较烦琐, 但是能够分离出不同尺寸的碳点, 具有更好的纯化效果。

2.5. 其它方法

除了离心、透析、层析、电泳等方法外, 还有很多研究者对自己制备的碳点研究了不同方法: 陈奕山等[39]以微波合成法为合成方法, 以抗坏血酸为碳源, 以聚乙二醇(PEG)为溶剂, 制备得到碳点原液, 然后利用实验室自制的错流过滤装置对碳点进行纯化, 首先采用陶瓷超滤膜对大颗粒的杂质进行去除; 然后采用纳滤膜对除去大颗粒的碳点溶液进行进一步的浓缩和洗涤, 从而去除掉其中的小分子杂质, 得到的碳点的平均粒径在 2 nm 左右, 具有较好的分散性, 且没有发生团聚现象。Chen 等[40]通过传统的水热合成法制备了亲水性的碳点, 并采用油/水界面自组装技术对其进行一个富集纯化, 与传统的 24 小时透析方法进行对比, 油水界面自主装策略得到的碳点的杂质残留量更少, 能耗更低, 荧光量子产率更高。

3. 结论

碳点自第一次出现至今, 研究者们一直对其荧光性质深感兴趣, 其制备方法以及应用价值也得到了广泛的研究。本文对近几年来涉及到的碳点的纯化方法进行了详细概述, 不论是离心法、透析净化法还是柱层析法和电泳法都有其各自的优缺点, 离心法一般能去除掉大颗粒的杂质, 但不能有效去除掉未反应完全的原料和一些小分子杂质; 透析膜净化法分离效率高、操作简便, 但是透析袋成本昂贵, 透析过程中消耗大量的时间和蒸馏水, 不具有经济性; 电泳法可以分离出不同尺寸的碳点但是又相对繁琐。因此, 根据研究内容以及需求的不同, 可以选择不同的纯化方法, 为了得到更好的纯化效果也可以通过过滤、透析、旋转蒸发等不同手段相结合。研究学者们为了更好的应用碳点, 也开始重视碳点的纯化问题, 更有研究学者开始对碳点的纯化进行专门的研究, 为碳点的分离纯化提供了一定的技术手段, 为未来更全面的应用碳点提供了一定基础。

4. 展望

经过长时间的研究和发展, 碳点的纯化已经取得了一定的进展, 各种纯化方法也得到了应用, 其广度和深度也得到了不断的发展, 大家也不再是使用单一的纯化方法, 而是通过不同纯化方法相结合或者探寻新的纯化方法。但是碳点的纯化仍然还存在一些实际的问题亟待解决, 比如大多数研究对于碳点的纯化还仅仅是离心过滤, 碳点是否纯化干净? 不同的纯化方式对实验结果是否有影响? 能否通过碳源的不同来制备特定的纯化方法? 总之, 随着碳点研究的逐渐深入, 纯化问题也需要得到更加全面的完善, 以期得到一个更加实际、合理、经济的纯化方法, 更好地服务于碳点的应用。

基金项目

重庆科技学院科技创新(YKJCX1820510)。

参考文献

- [1] Xu, X., Ray, R., Gu, Y., *et al.* (2015) Electrophoretic Analysis and Purification of Fluorescent Single-Walled Carbon Nanotube Fragments. *Journal of the American Chemical Society*, **126**, 12736-12737. <https://doi.org/10.1021/ja040082h>
- [2] 王珊珊, 米渭清, 朱红, 等. 一步微波法合成碳点及其荧光性质研究[J]. 光谱学与光谱分析, 2012, 32(10): 2710-2713.
- [3] 颜范勇, 邹宇, 王猛, 等. 荧光碳点的制备及应用[J]. 化学进展, 2014, 26(1): 61-74.
- [4] Li, H.T., He, X.D., Liu, Y., *et al.* (2011) Synthesis of Fluorescent Carbon Nanoparticles Directly from Active Carbon via a One-Step Ultrasonic Treatment. *Materials Research Bulletin*, **46**, 147-151. <https://doi.org/10.1016/j.materresbull.2010.10.013>
- [5] 张静, 江玉亮, 程钰, 等. 微波法制备丙三醇碳量子点并用作 Fe³⁺探针[J]. 高等学校化学学报, 2016, 37(1): 54-58.

- [6] Zhao, Y., Zhang, Y., Liu, X., *et al.* (2017) Novel Carbon Quantum Dots from Egg Yolk Oil and Their Haemostatic Effects. *Scientific Reports*, **7**, Article No. 4452. <https://doi.org/10.1038/s41598-017-04073-1>
- [7] 郭延柱, 刘苏珍, 刘真真, 等. 纤维素基氮掺杂碳量子点的制备[J]. 大连工业大学学报, 2018, 37(5): 43-48.
- [8] Zheng, Y.Y., Na, Z., Zhen, L., *et al.* (2014) Biomass-Based Carbon Dots: Synthesis and Application in Oxytetracycline Hydrochloride Determination. *Chinese Journal of Inorganic Chemistry*, **30**, 937-944.
- [9] 高宁萧, 徐玉龙, 刘勇. 豆奶粉提取碳点及含碳点荧光纳米纤维的制备[J]. 高等学校化学学报, 2019, 40(3): 555-559.
- [10] Zhang, M., Su, R., Zhong, J., *et al.* (2019) Red/Orange Dual-Emissive Carbon Dots for pH Sensing and Cell Imaging. *Nano Research*, **12**, 815-821. <https://doi.org/10.1007/s12274-019-2293-z>
- [11] Ma, J.-L., Yin, B.-C., Wu, X. and Ye, B.-C. (2016) Simple and Cost-Effective Glucose Detection Based on Carbon Nanodots Supported on Silver Nanoparticles. *Analytical Chemistry*, **89**, 1323-1328. <https://doi.org/10.1021/acs.analchem.6b04259>
- [12] Ray, S.C., Saha, A., Jana, N.R. and Sarkar, R. (2009) Fluorescent Carbon Nanoparticles: Synthesis, Characterization, and Bioimaging Application. *The Journal of Physical Chemistry C*, **113**, 18546-18551. <https://doi.org/10.1021/jp905912n>
- [13] Liu, R., Huang, H., Li, H., *et al.* (2013) Metal Nanoparticle/Carbon Quantum Dot Composite as a Photocatalyst for High-Efficiency Cyclohexane Oxidation. *Acs Catalysis*, **4**, 328-336. <https://doi.org/10.1021/cs400913h>
- [14] Zhu, C., Zhai, J. and Dong, S. (2012) Bifunctional Fluorescent Carbon Nanodots: Green Synthesis via Soy Milk and Application as Metal-Free Electrocatalysts for Oxygen Reduction. *Chemical Communications*, **48**, 9367-9369. <https://doi.org/10.1039/c2cc33844k>
- [15] Wang, L. and Zhou, H.S. (2014) Green Synthesis of Luminescent Nitrogen-Doped Carbon Dots from Milk and Its Imaging Application. *Analytical Chemistry*, **86**, 8902-8905. <https://doi.org/10.1021/ac502646x>
- [16] 李欣彤. 新型多彩的荧光碳量子点的制备以及生物成像研究[D]: [硕士学位论文]. 大连: 辽宁师范大学, 2014.
- [17] Liu, Q.L., Lin, Y., Xiong, J., *et al.* (2019) Disposable Paper-Based Analytical Device for Visual Speciation Analysis of Ag(I) and Silver Nanoparticles (AgNPs). *Analytical Chemistry*, **91**, 3359-3366. <https://doi.org/10.1021/acs.analchem.8b04609>
- [18] Chen, G.X., Wu, S.L., Hui, L.W., *et al.* (2016) Assembling Carbon Quantum Dots to a Layered Carbon for High-Density Supercapacitor Electrodes. *Scientific Reports*, **6**, Article No. 19028. <https://doi.org/10.1038/srep19028>
- [19] 贾晶, 路雯婧, 李林, 等. 橘色荧光碳点用于检测亚硝酸盐[J]. 分析化学, 2019, 47(4): 560-566.
- [20] 王诗琪, 涂雨菲, 刘之晓, 等. 微波法制备掺氮碳点及其用作探针检测铁离子[J]. 发光学报, 2019, 40(6): 751-757.
- [21] 徐孝林, 宋东成, 袁思煜, 等. 具有酸度敏感性的氮掺杂碳量子点的水热法制备及表征[J]. 广州化学, 2018, 43(1): 12-17.
- [22] Zhang, B., Liu, C.Y. and Liu, Y. (2010) A Novel One-Step Approach to Synthesize Fluorescent Carbon Nanoparticles. *European Journal of Inorganic Chemistry*, **2010**, 4411-4414. <https://doi.org/10.1002/ejic.201000622>
- [23] 邓亚君, 付琛, 魏静, 等. 一种新型碳量子点的合成及其对铜离子的检测[J]. 科学技术与工程, 2016, 16(11): 132-135.
- [24] Hu, C., Yu, C., Li, M., *et al.* (2015) Nitrogen-Doped Carbon Dots Decorated on Graphene: A Novel All-Carbon Hybrid Electrocatalyst for Enhanced Oxygen Reduction Reaction. *Chemical Communications*, **51**, 3419-3422. <https://doi.org/10.1039/C4CC08735F>
- [25] Sun, D., Ban, R., Zhang, P.H., *et al.* (2013) Hair Fiber as a Precursor for Synthesizing of Sulfur- and Nitrogen-Co-Doped Carbon Dots with Tunable Luminescence Properties. *Carbon*, **64**, 424-434. <https://doi.org/10.1016/j.carbon.2013.07.095>
- [26] Peng, J., Gao, W., Gupta, B.K., *et al.* (2012) Graphene Quantum Dots Derived from Carbon Fibers. *Nano Letters*, **12**, 844-849. <https://doi.org/10.1021/nl2038979>
- [27] Han, Y., Tang, D., Yang, Y., *et al.* (2015) Non-Metal Single/Dual Doped Carbon Quantum Dots: A General Flame Synthetic Method and Electro-Catalytic Properties. *Nanoscale*, **7**, 5955-5962. <https://doi.org/10.1039/C4NR07116F>
- [28] Zhu, S., Meng, Q., Wang, L., *et al.* (2013) Highly Photoluminescent Carbon Dots for Multicolor Patterning, Sensors, and Bioimaging. *Angewandte Chemie*, **125**, 4045-4049. <https://doi.org/10.1002/ange.201300519>
- [29] Wang, Q., Liu, X., Zhang, L., *et al.* (2012) Microwave-Assisted Synthesis of Carbon Nanodots through an Eggshell Membrane and Their Fluorescent Application. *Analyst*, **137**, 5392-5397. <https://doi.org/10.1039/c2an36059d>
- [30] 吴富根, 杨婧婧, 高歌. 制备水溶性荧光碳点的方法及荧光碳点在抗菌及区分细菌中的应用[P]. 中国专利, CN201610170470.1. 2016-07-27.

- [31] Li, F., Liu, C., Yang, J., Wang, Z., Liu, W. and Tian, F. (2014) Mg/N Double Doping Strategy to Fabricate Extremely High Luminescent Carbon Dots for Bioimaging. *RSC Advances*, **4**, 3201-3205. <https://doi.org/10.1039/C3RA43826K>
- [32] 杨婷, 周影, 汪宁, 等. 硅硼掺杂碳点的制备及其在血红蛋白传感中的应用[J]. 分析化学, 2017, 45(12): 1996-2003.
- [33] Barman, S. and Sadhukhan, M. (2012) Facile Bulk Production of Highly Blue Fluorescent Graphitic Carbon Nitride Quantum Dots and Their Application as Highly Selective and Sensitive Sensors for the Detection of Mercuric and Iodide Ions in Aqueous Media. *Journal of Materials Chemistry*, **22**, 21832-21837. <https://doi.org/10.1039/c2jm35501a>
- [34] Apostolos, K., Antonios, A., Radek, Z., *et al.* (2018) Solid Phase Extraction for the Purification of Violet, Blue, Green and Yellow Emitting Carbon Dots. *Nanoscale*, **10**, 11293-11296.
- [35] Hinterberger, V., Damm, C., Haines, P., *et al.* (2019) Purification and Structural Elucidation of Carbon Dots by Column Chromatography. *Nanoscale*, **11**, 8464-8474.
- [36] Liu, H., Ye, T. and Mao, C. (2007) Fluorescent Carbon Nanoparticles Derived from Candle Soot. *Angewandte Chemie International Edition*, **46**, 6473-6475. <https://doi.org/10.1002/anie.200701271>
- [37] Zhou, L., Lin, Y.H., Huang, Z.Z., *et al.* (2012) Carbon Nanodots as Fluorescence Probes for Rapid, Sensitive, and Label-Free Detection of Hg²⁺ and Biothiols in Complex Matrices. *Chemical Communications*, **48**, 1147-1149. <https://doi.org/10.1039/C2CC16791C>
- [38] Liu, J.M., Lin, L.P., Wang, X.X., *et al.* (2012) Highly Selective and Sensitive Detection of Cu²⁺ with Lysine Enhancing Bovine Serum Albumin Modified-Carbon Dots Fluorescent Probe. *Analyst*, **137**, 2637-2642. <https://doi.org/10.1039/c2an35130g>
- [39] 陈奕山, 蔡逸丰, 张铭, 等. 多孔陶瓷膜用于碳量子点的分离与纯化[J]. 化工学报, 2018, 69(10): 154-161 +367.
- [40] Chen, X., Zhang, Z. and Zhao, J. (2015) Purification, Organophilicity and Transparent Fluorescent Bulk Material Fabrication Derived from Hydrophilic Carbon Dots. *RSC Advances*, **5**, 14492-14496. <https://doi.org/10.1039/C4RA15684F>