



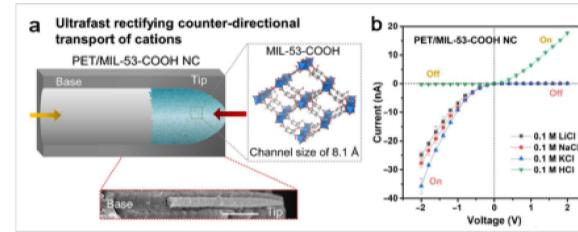
中国科大在纳米限域传质研究领域取得新进展

来源：科研部 发布时间：2022-04-15 浏览次数：119

近日，我校工程科学学院吴恒安教授研究团队与澳大利亚蒙纳士大学化学与生物工程系王焕庭教授研究团队展开合作，在纳米限域空间离子/质子的双向快速整流传输研究中取得了重要进展，研究成果发表在Science Advances上。

整流是指物质在通道中的单向传输。高效的离子整流通道是生物体调节各项生理机能的结构基础，例如生物膜表面的 K^+ 通道可以实现离子和质子沿相反方向进行整流传输，以保证膜两侧的电解质和pH平衡，维持各项生命活动的正常进行。此外，离子整流通道在清洁能源的转换和储存、可持续采矿的酸性溶液回收等工程技术实践中也有着广泛的应用前景。

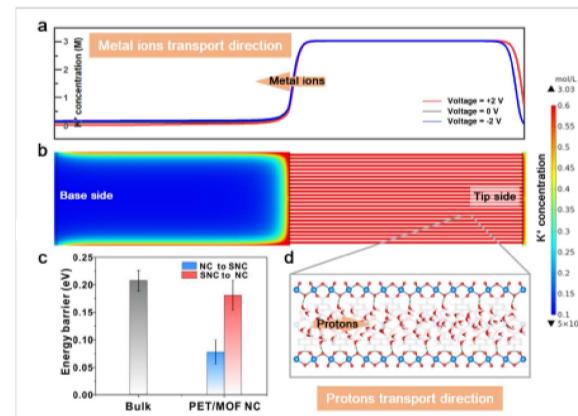
蒙纳士大学王焕庭教授研究团队制备了一种由金属有机物框架（metal-organic framework, MOF）和聚对苯二甲酸乙二醇酯（polyethylene terephthalate, PET）组合而成的非均质通道结构。具体做法是将MIL-53-COOH亚纳米通道填充在子弹头形状的PET纳米孔道的尖端，形成MOF亚纳米和PET纳米通道复合的非对称结构。这种非对称的纳米通道同时具备沿尖端向基端的金属离子整流效应和沿基端向尖端的质子整流效应，两种粒子的整流比均达到100以上。同时，该非均质通道结构具有很好的整流稳定性，在苛刻的pH条件和多次重复电压加载中都展现出金属离子和质子的快速整流传输。



尖端填充MOF的PET/MIL-53-COOH通道结构及其在不同溶液中的整流效应

我校计算力学团队发展了纳米限域传质理论模型，分析了该非对称纳米通道中离子/质子的整流传输现象，揭示了限域空间内金属离子和质子的双向快速整流传输机制。理论计算发现，限域空间内金属离子的传输受到浓度梯度的调控，而质子的传导则是由规则排列的水链结构决定，两种粒子不同的传输机制导致了该纳米通道具有双向整流特性。对于金属离子，PET/MIL-53-COOH纳米通道内，MOF填充部分包含大量的羧基官能团，这些官能团能够吸附溶液中的金属离子，形成固有的浓度梯度。这种浓度梯度会促进离子沿着尖端向基端传输而阻碍相反方向的离子传输，从而表现出金属离子沿尖端向基端的整流效应。对于质子而言，由于子弹形PET通道的非对称性，水分子在涌入MOF通道后形成了定向排布的水链结构，这种定向排布使质子沿基端向尖端迁移时所需克服的能量垒远小于其沿相反方向迁移时需克服的能量垒，因此质子的传输表现出沿基端向尖端的整流特性。

此外，由于MIL-53-COOH的通道中含有大量的极性官能团，分布在其中的水分子会与极性位点结合形成协同的氢键网络，进一步提高了质子的单向迁移能力，甚至高于相同尺寸碳纳米管中一维受限水链的质子传导能力，具有快速整流传输的特性。



PET/MIL-53-COOH纳米通道内离子/质子双向快速整流传输机制

本研究提出的限域空间内金属离子/质子的双向快速整流传输机制，为人工离子通道的结构设计提供了新的思路，有望推动高通量选择性膜技术的进一步发展。

该合作研究成果以“Ultrafast rectifying counter-directional transport of proton and metal ions in metal-organic framework-based nanochannels”为题发表在Science Advances上（Sci. Adv. 2022, 8(14), eabl5070）。蒙纳士大学博士后陆军、我校近代力学系博士生徐亨宇、博士后余昊以及蒙纳士大学博士生胡小钇为论文共同第一作者，蒙纳士大学王焕庭教授和我校吴恒安教授为论文通讯作者。

王焕庭教授现任澳大利亚蒙纳士大学膜创新中心主任，是澳大利亚工程院院士和“桂冠”教授（Australian Laureate Fellowships）。王焕庭院士是我校杰出校友，分别于1994年、1997年获得我校高分子化学硕士学位和材料化学博士学位。王焕庭院士一直积极推动蒙纳士大学与母校的多方位合作，包括学生访问交流和联合培养，前期与吴恒安教授团队在纳米限域下的水分子相态结构（Adv. Mater. 2020, 32(24), 2001777.）和快速输运（J. Membrane Sci. 2021, 621, 118934.）等方面取得了系列合作研究成果。

论文链接：<https://www.science.org/doi/10.1126/sciadv.abl5070>

(工程科学学院、中国科学院材料力学行为和设计重点实验室、科研部、国际合作与交流部)

