

相关文章链接

中共中国科学技术大学委员会全体
(扩大) 会议召开

食品安全守护行动——餐饮服务
集团开展食品安全系列主题活动

2.5-5um波段红外天光背景测量仪
研制成功

我校成功举办2020中国科大与浙
江人才培养合作交流会

舒歌群书记、包信和校长赴中国科
大-德清阿尔法创新研究院考察
调...

中国科大-德清阿尔法创新研究院
今日正式开园

安徽省高校数字图书馆“十四五”
发展研讨会召开

中国科大首次发现磁通量绳内部的
磁场重联

财政部安徽监管局党组书记、局长
江乐森一行来我校调研

我校成功举办2020年研究生招生
“云”夏令营系列活动

友情链接

中国科学院
中国科学技术大学
中国科大历史文化网
中国科大新闻中心
中国科大新浪微博
瀚海星云
科大校友创新基金会
中国高校传媒联盟
全院办校专题网站
中国科大60周年校庆
中国科大邮箱

● 首页 ● 新闻博览

中国科大在氢键有机骨架材料的可燃冰模拟研究中取得进展

2020-06-23

分享到: QQ空间 新浪微博 腾讯微博 人人网 微信

可燃冰是一种由天然气与水在高压低温条件下形成的类冰状的结晶物质，其燃烧值高、清洁无污染、分布广泛且储量巨大，是一种潜在的绿色能源。在低温和高压条件下，可燃冰的结构表现为气体分子（甲烷）被由氢键构筑的、具有笼状结构的固态水分子包裹；但是随着温度升高、压力降低，该结构会坍塌并伴随气体释放，而再次实现甲烷在水分子中的存储则需要严苛的条件（图1a：小于10 °C，大于30 atm）。因此，如何在温和条件下（如大气氛围），以经济、高效的方式，实现在多孔材料的主体结构形成和破坏过程中实现客体分子可重复的引入和释放，具有重要的科学意义。

一般而言，多孔材料对客体分子的吸附是一种自发的放热过程，而脱附则需要额外的能量输入来完成吸热过程，（图1b）如何能减少这样的能量消耗具有重要的实际意义。近日，中国科学技术大学化学与材料科学学院刘波课题组发展了一种由胍离子和硼酸盐离子构建的离子型氢键有机骨架（HOF）材料，在常温常压下实现主体结构的解离和重构，同时伴随着客体分子的释放和可逆吸附。相关研究成果以“Combustible ice mimicking behavior of hydrogen-bonded organic framework at ambient condition”为题，于6月19日发表在《自然·通讯》（Nature Communications, 2020, 11, 3124）。论文的第一作者是我校博士研究生王洋同学。

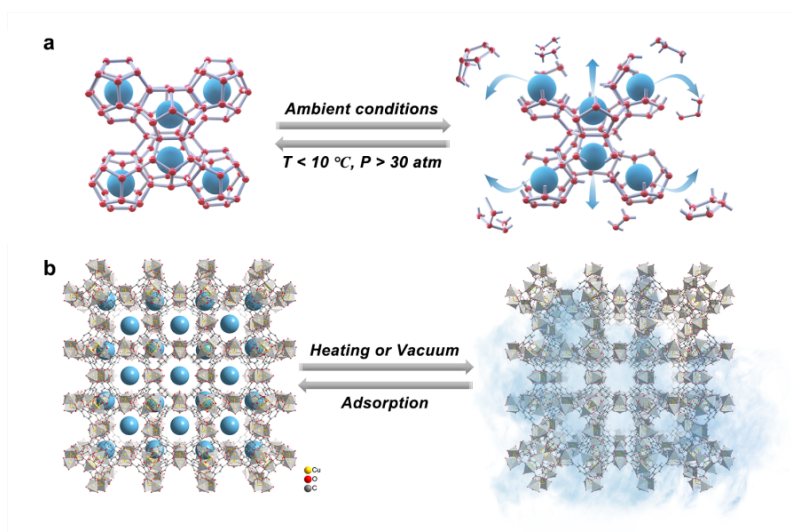


图1: 不同条件下，(a) 可燃冰和 (b) 金属有机骨架材料中主体结构的变化和客体分子的吸附 / 释放过程。

氢键辅助的超分子组装得到的骨架材料尽管具有结构上的灵活性，但正因为氢键的非共价弱相互作用导致主体结构非常脆弱，在释放客体分子的过程中出现结构坍塌。相比较而言，除了氢键和范德华力，阴阳离子间的静电吸引作用在组装形成离子型HOF的过程中扮演着重要作用，可以显著增强骨架材料的稳定性。研究人员发现，硼酸酯阴离子和胍阳离子通过静电相互作用和氢键构成的离子型HOF $[B(OCH_3)_4]_3[C(NH_2)_3]_4Cl \cdot 4CH_3OH$ 具有亚稳态特性，在常温常压下会因为硼酸酯的水解，出现结构坍塌和客体分子（甲醇）的释放，从而使结构中所有的 $-OCH_3$ 去除完全并部分转化为 $-OH$ 。重要的是，最终得到的稳定产物在甲醇气氛或溶剂中，可通过重结晶重新完成结构的重构和甲醇的引入（图2）。上述循环过程在常温常压下无需借助外界能量输入即可实现。

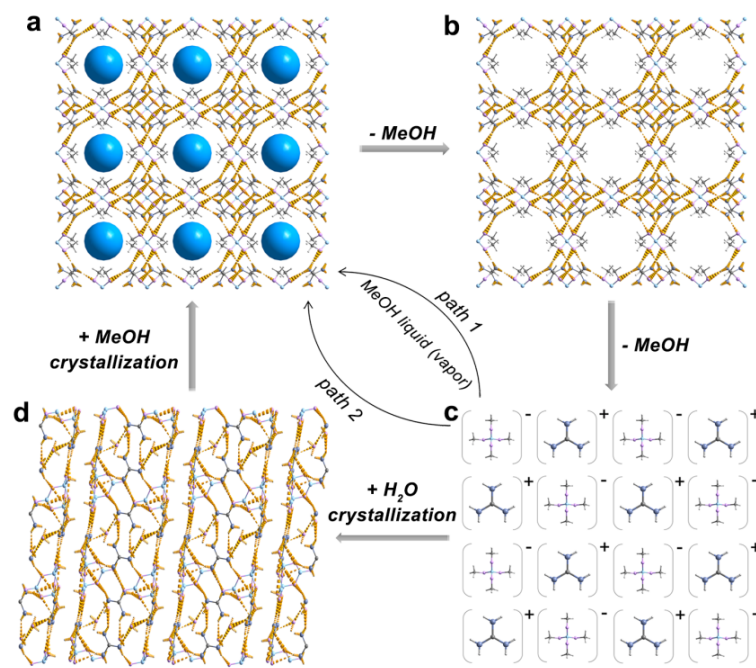


图2: 常温常压下, 离子型HOF的结构转变和客体分子的去除 / 引入过程。

进一步吸附研究结果显示, 客体分子甲醇在结构重建的过程中, 一方面部分甲醇 (3/4总量) 会重新参与形成硼酸酯, 另一方面会随着结构的逐渐恢复被吸附在HOF孔内 (1/4总量), 从而完成该HOF材料的可逆结构转变, 整个过程的吸 / 脱附总量与结构式相符, 且甲醇总释放量在该材料中的占比高达60%。另外, 存在于HOF孔内的甲醇可以经室温释放, 在空气中直接点燃而不破坏主体骨架结构。这一系列过程在常温常压下以便捷、经济的方式模拟了可燃冰存储和释放甲烷分子的行为。

综上, 这项工作阐述了离子型HOF材料可以在自然条件下通过VOC分子的释放和吸附实现可逆结构转变, 这一系列过程无需外界能量来消除主客体的相互作用, 这种亚稳态的HOF为探索高效的能源载体材料提供了新的研究思路。

该项研究得到国家自然科学基金面上项目、中央高校基本科研专项资金和安徽省自然科学基金的资助。

附文章链接: <https://doi.org/10.1038/s41467-020-16976-1>

(合肥微尺度物质科学国家研究中心、化学与材料科学学院、科研部)

中国科大新闻网



中国科大官方微博



中国科大官方微信

