
科学家基于GMG-SMJs揭示轮烷分子梭的热、动力学过程

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/16776.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

科学家基于GMG-SMJs揭示轮烷分子梭的热、动力学过程。

近日，华东师范大学张亮研究员、David Leigh特聘教授和北京大学郭雪峰教授团队合作报道了基于石墨烯-分子-石墨烯单分子结技术（GMG-SMJs）来探究轮烷分子梭的热、动力学过程。

2021年12月3日，该文以Real-time observation of the dynamics of an individual rotaxane molecular shuttle using a single-molecule junction为题，在线发表在Chem期刊上。

理解分子机器的运行原理以及其中各组分的动力学特征对于设计不同功能的分子机器至关重要。蛋白马达分子的动力学研究通常使用单分子技术，如原子力显微镜和光镊等技术。相比之下，仿生纳米分子机器比生物分子机器要小得多，它们的动力学研究通常是通过系综实验如核磁氢谱，紫外可见吸收光谱和圆二色谱等技术在溶液中对分子的平均化行为进行表征。然而，系综实验往往会淹没掉运动过程中重要的步骤，比如中间态、运动机制等信息。因此，如何将具有高时间、结构及空间分辨率的单分子技术与仿生合成分子机器相结合，从而系统性地研究仿生分子机器的热、动力学行为，是当前分子机器研究领域的关键科学问题和技术挑战之一。

近日，华东师范大学张亮研究员、David Leigh特聘教授和北京大学郭雪峰教授团队合作报道了基于石墨烯-分子-石墨烯单分子结技术（GMG-SMJs）来探究轮烷分子梭的热、动力学过程。他们将轮烷分子与石墨烯点电极共价连接，通过对该单分子器件的电流的实时监测，探究轮烷分子温度和溶剂依赖性的穿梭动力学，并成功地观察到系综实验未能表征到的弱结合中间态。该工作不仅弥补了单分子力学技术在仿生分子机器温度依赖动态行为方面研究的不足，也为分子机器未来的设计及运行机理的深度探索上奠定了重要的基础。

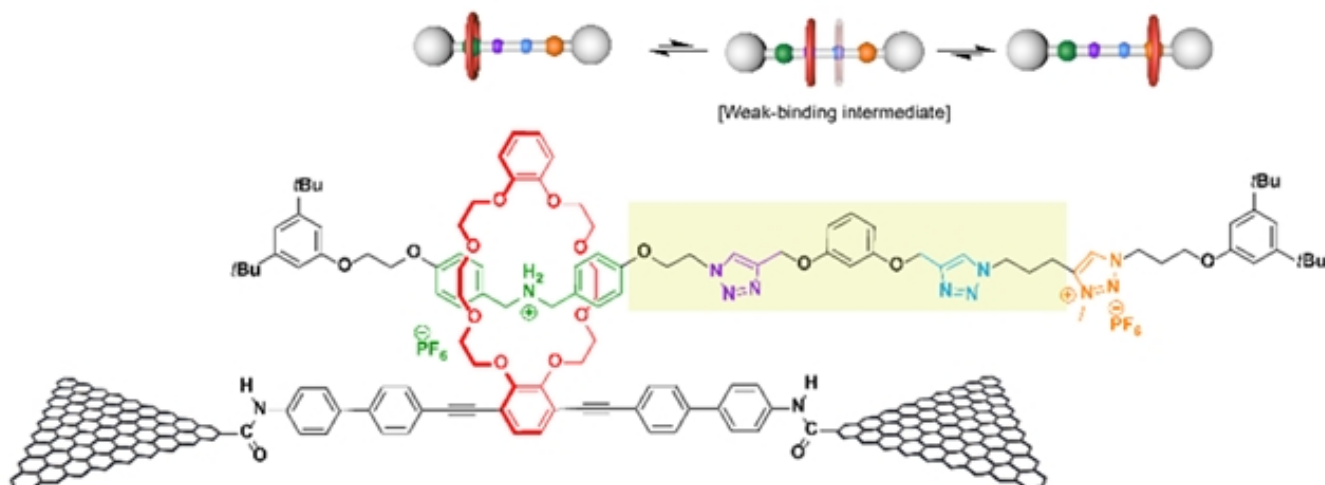


图1：单分子器件的结构示意图。

实验结果表明，在不同的温度范围（288 ~ 328 K）和不同的溶剂（乙腈和二甲基亚砷）下，动力学和热力学过程参数的变化，与理论模拟和系综实验结果定量相关。并且，在DMSO测试条件下，系综实验无法确定的弱结合中间态被观察到，结合计算分析可将该中间态归属为大环与中间三氮唑位点的弱相互作用所致。该中间态被观察到的原因，得益于GMG-SMJs技术的高空间分辨率（~1 nm）和高时间分辨率（~17 μ s）以及较大极性的二甲基亚砷削弱了大环和各个位点之间的氢键作用，改变了大环在不同位点之间的分配比，导致大环停留在三氮唑位点的几率增加，从而相比于在乙腈溶液中更容易被观察到。

图2：单分子电学检测结果和理论分析

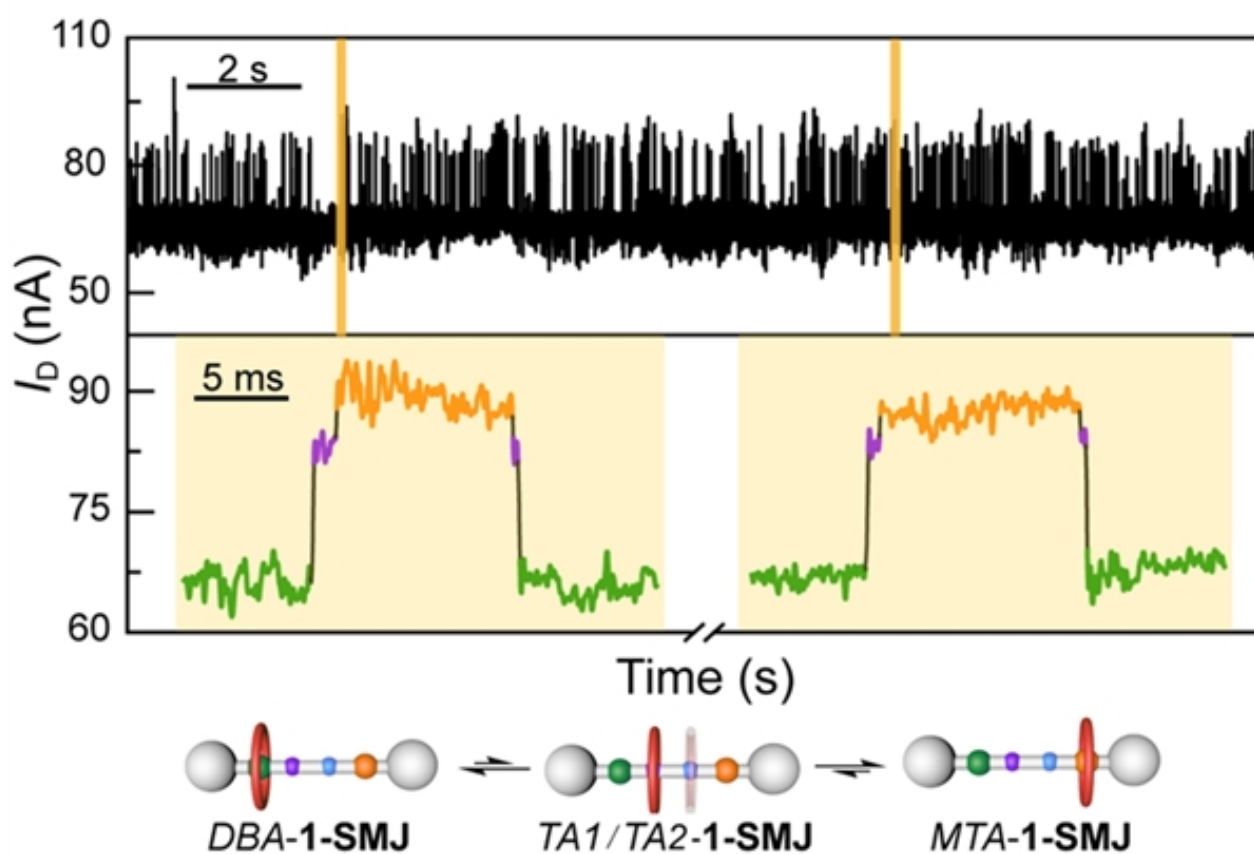


图3：弱结合中间态的捕获。

该研究通过SMJ技术，文章系统性地探究了单分子水平上分子梭的运动过程，阐述了轮烷分子在溶液状态下穿梭过程的热、动力学行为，并且首次揭示了一种弱结合中间态。不仅为合成分子机

器的结构、动力学和操作机制等容易被系综实验所淹没的问题提供了很好的参考价值，对以后分子机器的设计具有重要的指导意义。（来源：科学网）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1016/j.chempr.2021.11.012>

作者：张亮等 来源：《化学》

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发