

黎占亭张丹维团队在氢键和卤键协同驱动超分子螺旋体构建方面取得重要进展

发布时间: 2019-02-27

近日, 化学系黎占亭张丹维团队利用分子间N...I卤键将短的芳酰胺折叠体“粘接”成超分子螺旋结构。研究发现, 新的自组装螺旋能够叠加形成更复杂的超分子双股, 甚至四股螺旋结构。博士生刘传志和博士后Satisch Koppireddi为共同第一作者, 研究成果发表在《德国应用化学》上 (Angew. Chem. Int. Ed. **2019**, 58, 226-230)。论文链接:

<https://onlinelibrary.wiley.com/doi/full/10.1002/anie.201811561>

(<https://onlinelibrary.wiley.com/doi/full/10.1002/anie.201811561>)

研究小组设计了一类芳酰胺寡聚体, 选用-CF₂I基团为卤键供体, 吡啶基团为卤键受体, 引入到芳酰胺寡聚体两端, 晶体结构显示, 通过分子内N-H...O氢键控制分子的构象, 分子间的N...I卤键诱导这些分子形成P和M两种手性的超分子螺旋结构。

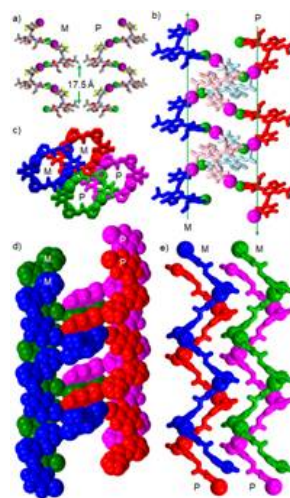


图1 化合物1的四股螺旋堆积模式

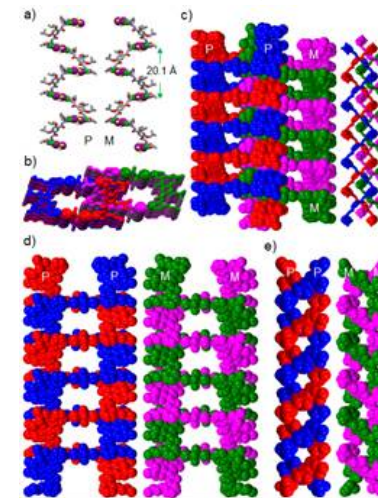


图2 2•3的四股螺旋堆积模式

如图1所示, 对于卤键供体和受体在同一分子两端的化合物1, X射线单晶衍射分析发现其通过分子间很强的N...I卤键作用 (N...I距离2.87 Å, $R_{XB} = 0.81$) 首尾相连形成超分子聚合物。这种卤键作用诱导分子形成超分子P和M螺旋结构, 形式上是镜像对称的。分子内的扭曲, 使得端位的两个芳环平面的夹角达到了51.5°, 相邻螺旋的螺距为17.5 Å。尽管具有如此大的螺距, 这两个螺旋仍然产生了一个空腔, 但是这个空腔并没有捕获任何溶剂分子。相邻的P和M螺旋以反平行的方式将其组分分子堆积在内侧, 形成超分子双螺旋结构, 双螺旋结构进一步堆积形成类似G-四联体的超分子四螺旋结构。

如图2所示, 化合物2的两个端基均为卤键受体吡啶, 我们将其与1,2-二碘全氟乙烷(3)形成共晶。晶体结构解析发现, 通过N...I卤键(N...I距离2.75和2.83 Å)诱导其形成双组分交替排列的P和M超分子螺旋体, 一轮螺旋有四个分子(2+2)组成。两个P螺旋结构和两个M螺旋结构交替堆积, 形成另一个点键超分子四螺旋结构。这一四螺旋结构在二维空间进一步堆积形成平面阵列结构。这一工作证明了卤键是一种有效的非共价键, 其与氢键有高度的正交性, 可以驱动短的芳酰胺折叠体向超分子螺旋结构的生长。此外, 螺旋体的构筑单元还可以进行官能的修饰, 有可能得到稳定的空腔, 用于研究新的客体识别或运输。

[首页 \(http://chemistry.fudan.edu.cn/main.htm\)](http://chemistry.fudan.edu.cn/main.htm)

[本系概况 \(/bxgkw/list.htm\)](#)

[师资队伍 \(http://chemistry.fudan.edu.cn/xsdtr/list.htm\)](http://chemistry.fudan.edu.cn/xsdtr/list.htm)

[科学研究 \(/21865/list.htm\)](/21865/list.htm)

[人才培养 \(/21866/list.htm\)](/21866/list.htm)

[教工之家 \(/21867/list.htm\)](/21867/list.htm)

[社团活动 \(/21868/list.htm\)](/21868/list.htm)

[学生园地 \(/xsyd/list.htm\)](/xsyd/list.htm)

[校友天地 \(/21869/list.htm\)](/21869/list.htm)

[招聘信息 \(/21870/list.htm\)](/21870/list.htm)

友情链接: [复旦首页 \(/ _redirect?siteId=169&columnId=21877&articleId=236980\)](#) |

[图书馆 \(/ _redirect?siteId=169&columnId=21877&articleId=236979\)](#) |

[教务处 \(/ _redirect?siteId=169&columnId=21877&articleId=236978\)](#) |

[财务处 \(/ _redirect?siteId=169&columnId=21877&articleId=236976\)](#) |

[ehall办事大厅 \(/ _redirect?siteId=169&columnId=21877&articleId=322603\)](#) |

地址: 上海市杨浦区淞沪路2005号复旦大学江湾校区化学楼 邮编: 200438 电话: 86-21-31242791

版权所有 © 复旦大学化学系 2014 技术支持: 维程互联 (<http://51eweb.cn/Home/>)