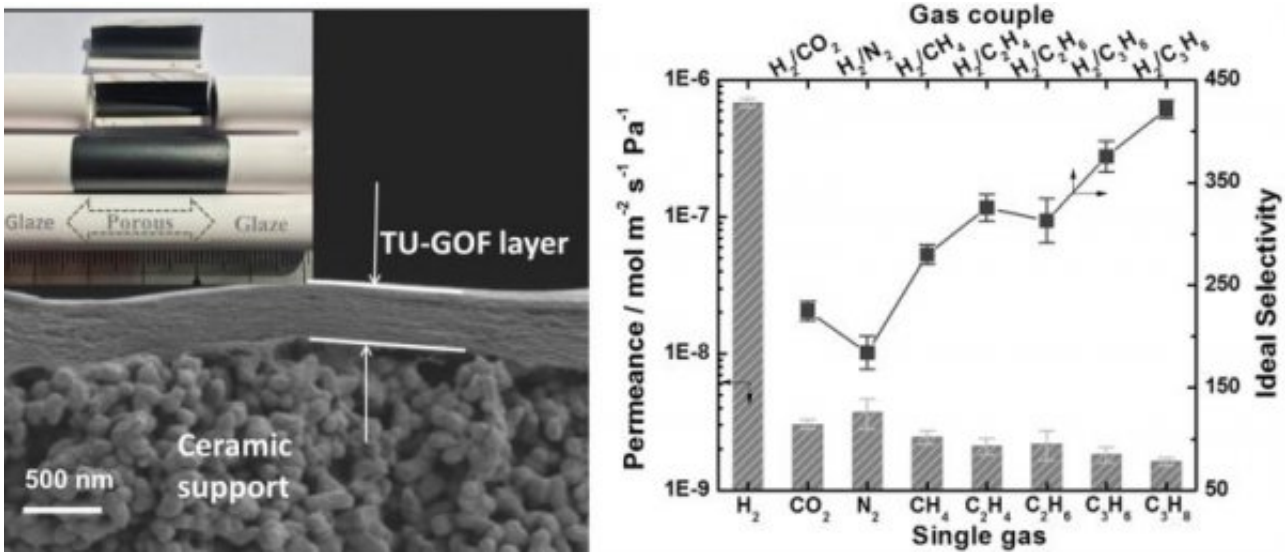
上海高研院等在氧化石墨烯框架膜研究中取得进展



TU-GOF复合膜实物、截面形貌和气体渗透性能

近日，中国科学院低碳转化科学与工程重点实验室暨中科院上海高等研究院-上海科技大学低碳能源联合实验室在自组装制备氧化石墨烯框架复合膜用于气体小分子筛分研究中取得进展。

单层氧化石墨烯（GO）堆垛形成的二维层间纳米通道可用于尺寸筛分。由于具有材料易得、制备简单和性能优越等特点，GO基膜已迅速成为当今膜科学与技术前沿的一项重要和热门课题，分离对象涵盖气体、液体和脱盐等领域。随着研究深入，GO基膜凸显两个主要问题，一是如何精确调控二维通道大小以适应不同对象（特别是小分子）的分离需求；二是如何有效增强层间作用力和强度，提升膜的可用性。

GO基膜与分子筛膜等具有内部强相互作用不同，其体相主要为pi-pi键和氢键等弱作用力，膜机械强度低，且客体分子在分离时可以轻易扩大层间距，从而影响分离性能和稳定性。增强碳层间的作用力最直接有效的办法是以GO含氧基团为“锚点”，通过交联分子对GO碳层进行共价桥连，从而形成层间距均一的氧化石墨烯框架（GOFs）。为同时达到控制层间距满足小分子筛分的目的，交联分子需拥有多活性基团，且尺寸越小越有利于层间距控制。

在该研究中，研究员孙予罕、曾高峰团队选择了具有双NH2-和C=S-多活性终端，分子骨架仅有3原子，且具有弱还原性的硫脲（TU）作为交联分子。为获得均质连续的GOF复合膜，该团队首先通过载体表面嫁接的活性基团与GO反应，在载体上固定单层GO；再由TU、GO经脱水缩合和亲核加成反应，在载体上实现周期性组装形成均质TU-GOF复合膜，首次实现层层自组装。通过条件控制，TU-GOF膜的层间距可精确调控，膜厚可控制在数十纳米。表征结果证实，TU对碳层的固定作用极大抑制了膜在分离介质中的溶胀变形，显著增强了膜的机械稳定性。分离结果表明，TU-GOF膜对H2具有高选择性，如H2/CO2、H2/N2和H2/CH4理想选择性达~200，H2渗透速率为10-7mol/m2/s/Pa。这是GO基膜首次基于二维层间筛分实现H2高效分离，且性能远高于聚合物膜的Robeson上限，也优于大部分无机膜。

相关研究成果发表在《先进材料》上。该研究得到了国家自然科学基金委、中科院青年创新促进会和国家重点研发计划纳米专项等的资助。

原文地址：http://www.china-nengyuan.com/tech/122250.html