

CoopCat: rozwój koncepcji i metod teoretycznych w celu zrozumienia efektów kooperatywnych w katalizie chemicznej

Podczas produkcji znakomitej większości związków chemicznych przynajmniej jeden etap syntezy jest etapem katalitycznym. Użycie odpowiedniego katalizatora zmniejsza ilość produktów ubocznych, a także poprawia ogólny bilans energetyczny produkcji, co stanowi podstawę ulepszania procesów chemicznych a także wspiera implementację wytycznych tzw. *zielonej chemii*. Większość katalizatorów wytworzonych przez człowieka to związki jednofunkcyjne – posiadają one centra aktywne jednego typu oddziaływające z substratami. W ostatnich latach, dzięki rozwojowi metod syntetycznych, a także dzięki postępowi w zrozumieniu efektów katalitycznych, możliwe stało się użycie katalizatorów wielofunkcyjnych. Dzięki dodatkowym grupom chemicznym wykazują one zwiększoną aktywność w pewnych reakcjach chemicznych. Fenomen ten nazywany jest kooperatywnością. Taka dodana funkcjonalność katalizatora może mieć różną naturę: może to być dodatkowe centrum metaliczne lub specjalna grupa atomów (ligand). Niestety, w większości przypadków zrozumienie mechanizmu kooperatywności konkretnej modyfikacji jest bardzo skomplikowane, co uniemożliwia systematyczny rozwój i ulepszanie danego procesu.

W ramach projektu CoopCat skupimy się na rozwoju modeli i koncepcji opisujących katalizę kooperatywną oraz na opracowaniu metod teoretycznych do opisu i przewidywania działania wybranych katalizatorów kooperatywnych. Pracować będziemy nad problemami katalitycznymi, które pozornie są bardzo odległe od siebie, ze względu na klasyczny podział na katalizę homogeniczną (katalizator i substraty w tej samej fazie, np. gazowej), heterogeniczną (katalizator i substraty znajdują się w różnych fazach, np. stałej i wodnej) i enzymatyczną (podstawa materii żywej). Koncept katalizy kooperatywnej wymusza jednak wyjście poza ramy jednej dziedziny: katalizator homogeniczny może być osadzony na podłożu stałym, ligand przyłączony do centrum metalicznego może być małym białkiem (polipeptydem). Podczas realizacji projektu będziemy stosować i rozwijać dokładne metody obliczeniowe do rozwiązywania bardzo zróżnicowanych problemów poprzez konstrukcję modeli opisujących poprawnie wszystkie oddziaływania fizyczne w badanych układach.

Większość rezultatów realizacji projektu będzie mogła być bezpośrednio użyta do optymalizacji znanych układów katalitycznych. Przykładowo rozwinięta technika wbudowywania pozwoli na użycie bardzo dokładnych metod teoretycznych do otrzymania ilościowych danych na temat reakcji chemicznych zachodzących na powierzchni katalizatorów metalicznych bez odwoływania się do metod empirycznych. Dane takie są dziś dostępne na poziomie jakościowym i wielu przypadkach nie pozwalają na efektywną optymalizację katalizatorów. Zdobyta wiedza pozwoli nam również na rozwinięcie modeli oddziaływań dalekozasięgowych w białkach co pozwoli nam na dokładną symulację działania metaloenzymów. Zademonstrujemy, że tzw. metody o obniżonej skalowalności (ang. *reduced scaling*) mogą być użyte w przypadku każdego rodzaju katalizy. Takie ujednoczenie metodologii pozwoli na wyeliminowanie części typowych niedokładności w obliczeniach.

Metody i modele opracowane podczas realizacji projektu przyczynią się również do zrozumienia i ulepszenia metod otrzymywania wysokowartościowych produktów takich jak enancjomerycznie czyste, wielofunkcyjne związki służące jako prekursorzy leków, witamin i substancji zapachowych. paliwa przyszłości – wodoru. Równolegle badać będziemy katalizatory będące kompleksami metali przejściowych i małych białek (oligopeptydów), które pozwalają na elektrochemiczne utlenianie wody. Ulepszenie tego procesu pozwoli na zoptymalizowanie przechowywania energii chemicznej. Zaadoptujemy tzw. model aktywacji-naprężenia, typowo stosowany w katalizie homogenicznej, do wyjaśnienia różnic w czułości enzymów katalizujących wytwarzanie wodoru na obecność tlenu. Porównując nasze symulacje atomistyczne z danymi eksperymentalnymi uzyskamy wskazówki na temat potencjalnych mutacji i ulepszeń katalizatora, które mogą w konsekwencji doprowadzić do uzyskania stabilnego i „zielonego” źródła biowodoru.