

Wiele produktów, z których korzystamy na co dzień, takich jak materiały, żywność czy leki, jest uzyskiwanych w procesach wykorzystujących katalizatory. Umożliwiają one przekształcanie prostych substancji chemicznych w gotowe cząsteczki, takie jak farmaceutyki czy agrochemikalia. Proces ten obejmuje tworzenie i zrywanie wiązań chemicznych, co zazwyczaj wymaga znacznego nakładu energii. Dlatego katalizatory odgrywają kluczową rolę, osłabiając określone wiązania chemiczne i ułatwiając tworzenie nowego, zazwyczaj w dużo łagodniejszych warunkach. Choć większość stosowanych katalizatorów jest syntetyczna, natura również dostarcza przykłady biologicznych katalizatorów znanych jako enzymy. Enzymy, podobnie jak przeciwciała, charakteryzują się unikatowymi właściwościami, takimi jak selektywność lub reaktywność, ale z reguły nie nadają się do procesów przemysłowych. Dodatkowo, wykazują one niezwykłą specyficzność, ponieważ zwykle katalizują konwersję tylko jednego typu (lub co najwyżej szeregu podobnych typów) cząsteczek substratu w cząsteczki produktu. Zrozumienie mechanizmów reakcji zachodzących z udziałem enzymów jest jednak kluczowe dla opracowania syntetycznych katalizatorów o podobnej selektywności i reaktywności, które będą odpowiednie do zastosowań przemysłowych. Mechanizmy enzymatyczne zazwyczaj obejmują wiązanie substratów we wnęce utworzonej przez nadbudowę białka. Prosty model takiego miejsca wiązania można znaleźć w molekułach posiadających zdefiniowaną wnękę, takich jak kapsuły lub klatki.

W oparciu o nasze wieloletnie doświadczenie i osiągnięcia, w przedstawionym projekcie proponujemy wykorzystanie podstaw chemii koordynacyjnej do tworzenia nowej generacji sztucznych enzymów opartych na wodno-rozpuszczalnych klatkach metalosupramolekularnych o interesujących właściwościach fizykochemicznych. Jest to możliwe poprzez odpowiednie zaprojektowanie szeregu ambidentnych ligandów organicznych, posiadających terminalnie ułożone jednostki pirydynowe odpowiedzialne za tworzenie klatek metalosupramolekularnych z jonami  $\text{Pd}^{2+}$ , oraz ugrupowanie chelatujące w ich środkowej części, umożliwiające wprowadzenie odpowiedniej funkcjonalizacji (modyfikowalna rozpuszczalność, fotoaktywność) poprzez koordynację jonów metali przejściowych ( $\text{Pd}^{2+}$ ,  $\text{Co}^{3+}$ ,  $\text{Ru}^{3+}$ ). Reakcja pomiędzy tak przygotowanymi ligandami a odpowiednimi jonami metali będzie stanowiła fundamentalny przełom w generowaniu złożonych układów trójwymiarowych. Proces ten oparty będzie w pierwszym etapie na syntezie odpowiednich metalloligandów o określonej strukturze i właściwościach dostosowanych do indywidualnych potrzeb, a następnie uformowanie architektury klatkowej. Charakterystyczna latarniowa (*ang: lantern-type*) budowa proponowanych klatek nadaje otrzymanym strukturom unikatowych właściwości: niemal sferyczny kształt wnęki, odpowiedni dla większości cząsteczek gości; obecność kwaśnych protonów wspomagających tworzenie niekowalencyjnych oddziaływań z gośćmi; oraz kationowa powłoka, która stanowi idealne środowisko dla anionów. Dlatego kolejnym aspektem tego projektu będzie zbadanie możliwości separacji i sekwestracji anionów halogenkowych z roztworów wodnych. Zdefiniowanie powinowactwa do halogenków w pierwszej fazie projektu pozwoli na określenie potencjału (foto)katalitycznego w reakcjach transformacji wiązania C-C oraz C-X.

Przedstawiony projekt badawczy ma wybitnie interdyscyplinarny charakter i obejmuje wiele dziedzin chemicznych, m.in. chemię organiczną, fizyczną chemię organiczną czy chemię kombinatoryczną, które zostały zidentyfikowane pod wspólnym szyldem chemii supramolekularnej. Proponowana koncepcja projektu wprowadza nowy kierunek badań nad wodno-rozpuszczalnymi układami metalosupramolekularnymi. Wyniki uzyskane w ramach realizacji projektu znacząco poszerzą wiedzę na temat projektowania funkcjonalnych układów klatkowych o właściwościach katalitycznych. Wymiernym efektem projektu będzie opracowanie: 1) efektywnych i selektywnych systemów separacji anionów z wody, 2) wydajnych katalizatorów reakcji substytucji oraz sprzęgania w środowisku wodnym.