

STRESZCZENIE ROZPRAWY DOKTORSKIEJ

Karolina Kinastowska

“Fotoregeneracja kofaktorów z użyciem metod nieenzymatycznych”

Ze względu na wysoką wydajność i wyjątkową selektywność reakcji enzymatycznych oraz łagodne warunki prowadzenia procesów, biokataliza stała się potężnym narzędziem syntezy chemicznej. Oksydoreduktazy są jedną z najważniejszych przemysłowo grup enzymów, jednak możliwość ich stosowania na dużą skalę ograniczona jest wysokim kosztem specyficznych kofaktorów, w szczególności ich zredukowanych form służących jako donory elektronów.

Stechiometryczna konsumpcja kofaktorów takich jak dinukleotydy nikotynoamidoadeninowy (NADH) w reakcji enzymatycznej pociąga za sobą konieczność regeneracji ich zredukowanych form. Z uwagi na liczne wady tradycyjnie stosowanej enzymatycznej regeneracji kofaktorów, rozwój alternatywnych, przyjaznych dla środowiska nieenzymatycznych metod stanowi ważny cel współczesnej katalizy.

Niniejsza rozprawa poświęcona została rozwijaniu fotokatalitycznych metod regeneracji NADH jako modelowego kofaktora z użyciem katalizatorów heterogenicznych. Cel ten realizowany był na dwa sposoby: poprzez zastosowanie nowych materiałów mających na celu zwiększenie efektywności procesu oraz, z drugiej strony, dogłębne badanie mechanizmu reakcji fotokatalitycznych.

Wyniki eksperymentalne zostały zaprezentowane w dwóch rozdziałach. Rozdział pierwszy skupia się na ulepszeniu procesu utleniania wody w kontekście jego wykorzystania w regeneracji kofaktorów. Zostało pokazane, że tlenek kobaltu jako katalizator powierzchniowy zwiększa efektywność fotokatalitycznego utleniania wody i jednocześnie zmniejsza degradację błękitu metylenowego na powierzchni fosforanu srebra. W rozdziale drugim mechanizm typowej fotokatalitycznej regeneracji NADH na materiale półprzewodnikowym z użyciem trietanolaminy (TEOA) jako donora elektronów został zbadany bardziej dogłębnie niż miało to miejsce dotychczas. Wykazano, że glikolaldehid powstający w wyniku fotokatalitycznego utleniania TEOA może bezpośrednio redukować NAD^+ , także w ciemności i pod nieobecność fotokatalizatora.