

Janus-arcú oxigenáz enzimmodellek előállítása

Preparation of Janus-faced oxygenase enzyme models

TÖRÖK Patrik¹, Dr. LAKK-BOGÁTH Dóra¹, Dr. KAIZER József¹

PANNON EGYETEM, Mérnöki Kar, Természettudományi Központ,
Bioszerves és Biokoordinációs Kémia Kutatócsoport,
8200 Veszprém Egyetem u. 10,
e-mail: torok.patrik@phd.uni-pannon.hu

ABSTRACT

Oxygenase enzymes can be classified as oxidoreductase enzymes, some of which may have ambiphilic (Janus-faced) properties. As we know, the molecular oxygen found in nature is extremely stable in its ground state, but the mentioned enzymes are able to activate it through the formation of reactive oxo and peroxy intermediates, which can participate in the catalyzed reactions with electrophilic and nucleophilic character. The aim of our work is the structural and functional modeling of these enzymes by synthesizing iron(II)-precursor complexes and examining the reactivity of the intermediates generated from them. During the synthesis of the complexes, structurally modified bidentate heterocyclic ligands were used. By modifying the ligands, we had the opportunity to fine-tune the reactivity and selectivity of the produced complexes. The reactive intermediates were then generated *in situ* from the produced compounds with the help of various oxidizing agents, and their reactivity in electrophilic and nucleophilic reactions was examined. Based on our latest results, we assume that different intermediates with different reactivity are formed under the influence of different oxidizing agents or different coligands. With the help of the developed functional and structural models, we would like to present the properties of the ambiphilic, Janus-faced intermediates, which are responsible for the oxidative reactivity of the modeled enzymes. Furthermore, we would like to understand the mechanism of the reactions.

Keywords: enzyme, oxidation, redox potential, intermediate

ÖSSZEFOGLALÓ

Az oxigenáz enzimek azon oxidoreduktáz enzimek közé sorolhatóak, amelyek közül néhány ambifil (Janus-arcú) sajátsággal rendelkezhet. Mint tudjuk a természetben megtalálható molekuláris oxigén alapállapotban rendkívül stabil, azonban az említett enzimek képesek aktiválni azt, reaktív oxo illetve peroxo intermedierek kialakításán keresztül, amelyek elektrofil és nukleofil karakterrel is részt vehetnek a katalizált reakciókban. Munkánk célja ezen enzimek szerkezeti és funkcionális modellezése vas(II)-prekursor komplexek szintézisével és a belőlük generált intermedierek reaktivitásának vizsgálatával. A modellek előállítása során szerkezetileg módosított kétfogú heterociklusos ligandumokat használtunk fel. A ligandumok módosításával lehetőségünk nyílt az előállított komplexek reaktivitásának és szelektivitásának finomhangolására. Az előállított vegyületekből ezután különböző oxidálószer segítségével *in situ* generáltuk a reaktív intermediereket, és vizsgáltuk reaktivitásukat elektrofil és nukleofil reakciókban. Legújabb eredményeink alapján azt feltételezzük, hogy a különböző oxidálószer vagy különböző koligandumok hatására más-más intermedierek alakulnak ki, amelyek reaktivitása is eltérő. A kidolgozott funkcionális és szerkezeti modellek segítségével szeretnénk bemutatni az ambifil, Janus-arcú intermedierek tulajdonságait, amelyek a modellezett enzimek oxidatív reaktivitásáért felelősek. Továbbá, szeretnénk feltérképezni a vizsgált reakciók mechanizmusát.

Kulcsszavak: enzim, oxidáció, redoxpotenciál, intermedier

Köszönetnyilvánítás: Köszönjük a támogatást a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Hivatalnak (OTKA K142212, TKP-2021-NKTA-21). A Kulturális és Innovációs Minisztérium ÚNKP-23-3-II-PE-13 kódszámú Új Nemzeti Kiválóság Programjának a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Alapból finanszírozott szakmai támogatásával készült.