

ABSTRAKT

TiO₂-katalyzovaná syntéza nukleosidů v nevodném prostředí formamidu, probíhající přes acyklonukleosidové meziprodukty, představuje alternativní cestu pro vznik monomerických jednotek nukleových kyselin, která by mohla vyřešit problém spojený s vytvořením β -glykosidické vazby mezi nukleovouází a cukerným zbytkem. V předložené výpočetní studii je představena možná reakční cesta pro prebiotickou, TiO₂-katalyzovanou syntézu purinových C₂- a C₃-acyklonukleosidů v prostředí formamidu, která nevyžaduje fotokatalytický nebo radikálový mechanismus. Maximální vypočtená aktivační energie podél reakční koordináty, odpovídající přibližně 32 kcal·mol⁻¹, je v experimentálních podmínkách Saladiny syntézy probíhající při teplotě 160 °C dostupná. Ukazujeme, že deprotonace methylenového uhlíku formaldehyd hydrátu, probíhající pravděpodobně na defektním povrchu anatasu, představuje rychlost určující krok celé reakce. Naše výpočty jsou tak ve shodě s představou Saladina a jeho kolegů o katalytické funkci TiO₂ povrchu při syntéze purinových acyklonukleosidů v horkém roztoku formamidu.