

2a Reunió de  
**Química Teòrica i Computacional**



27 i 28 de gener de 2025

Benvolguts/des participants,

després de la bona acollida de la **1a Reunió de Química Teòrica i Computacional (RQTC)**, us proposem una **2a edició!** Així, doncs, us donem la benvinguda a dos dies dedicats plenament a fer xarxa, a compartir ciència i a créixer com a comunitat científica.

Seguint amb la idea de donar protagonisme al màxim nombre de participants, aquesta 2a RQTC donarà visibilitat a la recerca duta a terme als Països Catalans a través de 21 contribucions orals, 25 contribucions flaix/pòster i 22 pòsters. Així, d'un total de 132 inscrits, hi haurà 74 comunicacions. Tornen a ser xifres magnífiques que són indicador de la bona acollida que té la reunió i, una edició més, us hem de donar les GRÀCIES!

En la primera edició, les xerrades plenàries van anar a càrrec de destacats membres de la nostra comunitat que han estat sempre molt activament involucrats en la xarxa de Química Teòrica i Computacional: la Rosa Caballol, el Miquel Duran, l'Agustí Lledós, el Josep M. Lluch, l'Enrique Ortí i el Josep M. Poblet. En aquesta edició, els encarregats de fer les plenàries, seran investigadors originaris dels Països Catalans i que duen a terme la seva recerca en institucions europees: la Merche Alfonso (Forschungszentrum Jülich), la Mònica Calatayud (Sorbonne Université), el Daniel Escudero (KU Leuven), l'Ainara Nova (Universitat d'Oslo) i l'Alberto Roldan (Cardiff University).

Volem acabar dient-vos que en aquesta edició hi ha representants de (per ordre alfabètic) Chemotargets SL, Donostia International Physics Center (DIPC), IMDEA Nanociència, Institut Català d'Investigació Química (ICIQ), Institut de Ciència Molecular/Universitat de València (ICMol-UV), Institut de Química Avançada de Catalunya (IQAC-CSIC), Institut de Química Computacional i Catàlisi/Universitat de Girona (IQCC-UdG), Institut de Química Teòrica i Computacional /Universitat de Barcelona (IQTC-UB), Institut Químic de Sarrià (IQS-URL), Síncrotó ALBA, Universitat Autònoma de Barcelona (UAB), Universitat de les Illes Balears (UIB), Universitat de Lleida (UdL), Universitat de Vic - Universitat Central de Catalunya (UVic-UCC), Universitat Jaume I (UJI), Universitat Politècnica de Catalunya (UPC), Universitat Rovira i Virgili (URV) i Vrije Universiteit Brussels (VUB). Ja és ben bé cert que 'venim del Nord, venim del Sud, de terra endins, de mar enllà' ... per compartir la Química Teòrica i Computacional, sota el paraigua de la Societat Catalana de Química.

El nostre desig com a Comitè Organitzador torna a ser el mateix: Gaudir de la ciència i la companyia durant aquests dos dies i, d'aquí a dos anys, repetir! ;-)

Salutacions cordials,  
Comitè Organitzador de la 2a RQTC



# Programa resumit

Dilluns	27/01/2025	Dimarts	28/01/2025
<b>09:30-10:00</b>	<b>Registre</b>		
Moderadora	Mercè Deumal	Moderadora	Maria Besora
<b>10:00-10:15</b>	<b>Benvinguda</b>		
	PL1 - Mònica Calatayud		O11 - Judit Gálvez Benitez
	O1 - Alejandro Cruz		O12 - Roger Monreal-Corona
10:15-11:30	O2 – Miguel Recio-Poo	10:00-11:30	O13 - Gerard Bru
	F1- Miquel Allés		O14 - Markel Ylla
	F2- Isaac Alcón		PL4 - Daniel Escudero-
	Representant IoChem-BD		
<b>11:30-12:00</b>	<b>Pausa i cafè</b>	<b>11:30-12:00</b>	<b>Pausa i cafè</b>
Moderador	Antoni Frontera	Moderador	Josep Lluís Garcés
	O3- Adrià Gil		O15 - Angelo Giussani
	O4- Berta Martínez-Bachs		O16 - Gantulga Norjmaa
	O5- Daniel Bosch		F18 - Daniel Dolz
	O6- Alex Pérez-Sánchez		F19 - Hande Abes
12:00-13:30	F3- Mireia Segado-Centellas	12:00-13:30	F20 - Janet Sánchez
	F4- Jonnelly Luizaga		F21 - Gerard Pareras
	F5- Arnau Garcia		F22 - Aqza E. John
	F6- Joan Grèbol-Tomàs		F23 - Manuel Cánovas
	F7- Mercè Alemany Chavarria		F24 - Mario Villares
			F25 – David Carvalho
			Representant Secció Jove SCQ
<b>13:30-15:00</b>	<b>Dinar, Pòsters i Fotografia</b>	<b>13:30-15:00</b>	<b>Dinar i Pòsters</b>
Moderadora	Sílvia Osuna	Moderador	Xevi Biarnés
	PL2 - Ainara Nova		O17 - Javier Heras-Domingo
	O7- Albert Masip-Sánchez		O18 - Gerard Comas-Vilà
	O8- Andrei Paulau		O19 - Laura Martínez-Castro
15:00-16:30	F8 - Sergio Posada-Pérez	15:00-16:45	O20 - Manuel Pérez-Escribano
	F9 - Cristina Berga		O21 - Sergi Burguera
	F10 - Arnau Cortés Llamas		PL5- Mercedes Alfonso-Prieto
	F11 - Catalina Nicolau		
	F12 - David Vázquez-Parga		
<b>16:30-17:00</b>	<b>Pausa i cafè</b>	<b>16:45-17:00</b>	<b>Clausura i entrega de premis</b>
Moderador	Vicent Moliner		
	O9 - Marc Alías-Rodríguez		
	O10 - Aitor Valdivia		
17:00-18:30	F13 – Laura Sánchez-Muñoz		
	F14 - Néstor García-Romeral		
	F15 - Daniel Torrens		
	F16 - Dani Blas Buch		
	F17 - Diego Ontiveros		
	PL3 - Alberto Roldan		
<b>20:30-23:00</b>	<b>Sopar</b>		

# Programa

<b>Dilluns</b>	<b>27/01/2025</b>
<b>09:30-10:00</b>	<b>Registre</b>
Moderadora	Mercè Deumal
<b>10:00-10:15</b>	<b>Benvinguda</b>
10:15-10:45	PL1 - Mònica Calatayud - La química de les superfícies: dels models simples a les aplicacions tecnològiques.  O1 - Alejandro Cruz - Desxifrant la modulació al·lostèrica de GPCRs. Receptor cannabinoide 1 com a sistema model.
10:45-11:15	O2 – Miguel Recio-Poo - Recombinació radiativa i no radiativa en petits nanoclústers de TiO <sub>2</sub> accelerada a través de reaccions d'hidratació.  F1- Miquel Allés - Interacció de l'Hidrogen Atòmic amb Superfícies de Metalls de Transició: Un Estudi Computacional de Gran Abast.
11:15-11:30	F2- Isaac Alcón - Rotant entre fases topològiques en polímers 1D conjugats.  Representant IoChem-BD
<b>11:30-12:00</b>	<b>Pausa i cafè</b>
Moderador	Antoni Frontera
12:00-13:00	O3- Adrià Gil - Ampliant coneixements en la interacció de lligants i complexos metàl·lics basats en fenantrolina i polioxometalats amb l'ADN dúplex i quadruplexes-G O4- Berta Martínez-Bachs - Explorant mecanismes no difusius per a la formació d'acetaldehid al medi interestel·lar: un estudi computacional O5- Daniel Bosch - Modelant el mecanisme de formació de l'eumelanina a partir de monòmers de DHI O6- Alex Pérez-Sánchez - El paper de la MaR1 en l'activació del receptor LGR6: Un nou camí cap a la regulació inflamatòria  F3- Mireia Segado-Centellas - Modelant l'Electrocatalisi de l'Aigua: Enfocament Microcinètic Híbrid integrant Dades de LSV i Mecanismes de DFT F4- Jonnelly Luizaga - Anàlisi computacional de la promiscuïtat de l-asparaginases
13:00-13:30	F5- Arnau Garcia - Estudi computacional de sistemes de transició d'espí units a nanoanells de carboni F6- Joan Grèbol-Tomàs - La deslocalització electrònica com a mesura d'aromaticitat en anells macrocíclics F7- Mercè Alemany Chavarria - Estudi computacional de la interacció de productes naturals i curcuminoids amb el Citocrom P450 CYP6CM1
<b>13:30-15:00</b>	<b>Dinar</b> <b>Pòsters – Fotografia de grup</b>

Moderadora Sílvia Osuna

15:00-15:30 PL2 - Ainara Nova - Disseny de catalitzadors per reaccions d'hidrogenació

O7- Albert Masip-Sánchez - DESC: una estratègia computacional automatitzada i eficient per a tenir en compte l'efecte dels contraions en solució

15:30-16:00 O8- Andrei Paulau - Disseny d'Aproximacions Semiempíriques Robustes del Funcional de la Densitat per a Energies i Propietats

F8 - Sergio Posada-Pérez - Catàlisis Verda: Àtoms Metàl·lics Suportats com a Catalitzadors per a Reaccions Sostenibles.

F9 - Cristina Berga - Desxifrant sistemes supramoleculars a nivell atòmic: dinàmica i catàlisi en l'espai confinat amb [2]-rotaxanes.

16:00-16:30 F10 - Arnau Cortés Llamas - Disseny de diradicals sintetitzables de spin alt per mitjà d'un mecanisme de transferència de càrrega

F11 - Catalina Nicolau - Estudi computacional de les interaccions no covalents entre nanopartícules Ag/Au i aminoàcids

F12 - David Vázquez-Parga - Descriptors per l'adsorció, difusió i dissociació de CO en superfícies de metalls de transició

16:30-17:00 Pausa i cafè

Moderador Vicent Moliner

O9 - Marc Alías-Rodríguez - Dinàmiques quàntiques nuclears amb la introducció d'un pols explícit

17:00-17:30 O10 - Aitor Valdivia - Explorant el mecanisme d'acció d'agents antivirals en Hemaglutinina: unió de l'inhibidor M090

F13 - Laura Sánchez-Muñoz - Forma i simetria dels poliedres de coordinació en compostos dels lantànids

F14 - Néstor García-Romeral - Estudi Teòric de la Formació de Interfases d'Heteroestructures Tipus TiO<sub>2</sub>/Ti<sub>2</sub>CTx

17:30-18:00 F15 - Daniel Torrens - Estudi dels bisadductes de reaccions multicomponent en metal·loful·lerens endoèdrics

F16 - Dani Blas Buch - Estudi de la Reacció de Reducció d'Oxigen (ORR) utilitzant un covalent orgànic radical framework com a electrocatalitzador

F17 - Diego Ontiveros - Explorant les Propietats Fotoactives dels MXens per a la Divisió de l'Aigua

18:00-18:30 PL3 - Alberto Roldan - Explorant la reactivitat química a l'era de la intel·ligència artificial

20:30-23:00 Sopar a l'Hotel Catalonia Plaza Catalunya. C/ de Bergara, 11, 08002 Barcelona

<b>Dimarts 28/01/2025</b>	
Moderadora	Maria Besora
10:00-11:00	<p>O11 - Judit Gálvez Benitez - Excitació de fotosensibilitzadors de porfirina per protons accelerats</p> <p>O12 - Roger Monreal-Corona - Intercepció intramolecular de la posició remota d'intermedis de complexos de vinilcarbè amb plata mitjançant la inserció del enllaç C(sp<sup>3</sup>)-H</p> <p>O13 - Gerard Bru - Estudi de la reacció de desplaçament del gas d'aigua inversa mitjançant camps de força reactius.</p> <p>O14 - Markel Ylla - Diagnòstic multireferencial basat en energies d'orbitals Kohn-Sham.</p>
11:00-11:30	PL4 - Daniel Escudero- Modelització "in silico" de la fotoluminescència
<b>11:30-12:00 Pausa i cafè</b>	
Moderador	Josep Lluís Garcés
12:00-12:45	<p>O15 - Angelo Giussani - Càlcul del rendiment quàntic d'emissió en complexos de Ir(III)</p> <p>O16 - Gantulga Norjmaa - Modelització de la reacció de Prins en metalocaixa M4L6</p>
12:45-13:30	<p>F18 - Daniel Dolz - Comprensió de la Reacció de Desplaçament de Gasos Inversa sobre un Catalitzador Mo<sub>2</sub>C MXene: Una Anàlisi Computacional Holística</p> <p>F19 - Hande Abes - Estudi mecanístic de la funcionalització divergent biocatalítica d'enllaços C-H a partir d'espècies reactives Fe-nitrè de ferro-heme</p> <p>F20 - Janet Sánchez - Avaluació de la dinàmica conformacional dels enzims HSV-TK i EHV4-TK implicats en la teràpia del gen suïcida contra el càncer.</p> <p>F21 - Gerard Pareras - Astrocatàlisis heterogènia. Modelització de processos de Fischer-Tropsch en el medi interestel·lar</p> <p>F22 - Aqza E. John - Estudi de la contribució electrostàtica en l'eficiència catalítica de retroaldolases evolucionades al laboratori</p> <p>F23 - Manuel Cánovas - Estudi DFT i model microcinètic per a la hidrogenació de CO<sub>2</sub> amb Ru encapsulat en silicalita</p> <p>F24 - Mario Villares - Enginyeria d'atributs en l'oxidació de l'aigua catalitzada per POMs</p> <p>F25 - David Carvalho - Anàlisi computacional de la propagació en la interfície en un material commutable cooperatiu de creuament de spin de Fe(III)</p> <p>Representant Secció Jove SCQ - Gerard Pareras</p>
<b>13:30-15:00</b>	<b>Dinar Pòsters</b>

Moderador	Xevi Biarnés
15:00-16:15	<p>O17 - Javier Heras-Domingo - Desxifrant el Potencial de L'EXAFS: Aprenentatge Automàtic per a Dades Espectroscòpiques</p> <p>O18 - Gerard Comas-Vilà - Noves eines d'anàlisi de la funció d'ona: els orbitals efectius de fragment.</p> <p>O19 - Laura Martínez-Castro - Estudi computacional del citocrom P450 CYP199A4</p> <p>O20 - Manuel Pérez-Escribano - Computational prediction of hole mobilities for organic electronics</p> <p>O21 - Sergi Burguera - L'enllaç regium i la seva rellevància en el context de la química inorgànica i bioinorgànica des d'una perspectiva teòrica.</p>
16:15-16:45	PL5- Mercedes Alfonso-Prieto - Ensumant noves funcions dels receptors de l'olfacte amb simulacions de dinàmica molecular
16:45-17:00	<p><b>Clausura</b></p> <p><b>Entrega de Premis (millors flaixs i pòsters)</b></p>

# Pòsters

- P1 - Yanis Abid Charef** - Estudi Computacional de la Síntesi Electroquímica d'Urea Catalitzada per PdCu
- P2 - Jordi Juárez Jiménez** - Envers al mecanisme d'estabilització dels adhesius moleculars en complexes proteïna-proteïna.
- P3 - Guillem Pey** - Estudi mecanístic i cinètic de la reducció electroquímica de CO<sub>2</sub> amb un catalitzador de manganès(I) en condicions anhidres
- P4 - Esther Pruna** - Caracterització computacional de les L-Treonina Transaldolases per a la síntesis d'aminoàcids β-hidroxilats
- P5 - Salomé Lladrés** - Descobrint els factors estructurals que modulen la selectivitat per als sterols del domini N-terminal del transportador NPC1L1
- P6 - Álvaro Serrano-Morrás** - OpenDUck, una llibreria en codi obert per al desenvolupament d'aplicacions de dinàmica molecular dirigida
- P7 - Didac-Armand Fenoll** - La tensió anular afavoreix la síntesi atom-economy de 1,3-diens substituïts per metàtesi d'enins creuada
- P8 - Adenilson Felipe Sousa-Silva** - Perspectiva atòmica de la interfase Ferro-Aigua en diferents condicions electroquímiques
- P9 - Alejandro Gracia** - Estudi cinètic comparatiu de la hidrogenació de CO<sub>2</sub>(g) sobre Ni(111): Model microcinètic vs. simulacions cinètiques de Monte Carlo
- P10 - Raúl Lago-Saavedra** - Mecanisme d'evolució temporal de la regulació al·lostèrica fotofarmacològica del receptor metabotrópic de glutamat 5
- P11 - Irina Cuesta** - Anàlisi Computacional del Comportament de Caixes Metal·lorgàniques en Dissolució
- P12 - Ilenia Lupinu** - Avaluant la idoneïtat de dissenyar antivirals en un lloc d'unió atípic de l'hemaglutinina
- P13 - Pau Franquesa** - Activació del signe d'acoblament magnètic en compostos basats en BTBN mitjançant el mecanisme de polarització d'spin
- P14 - Fatemeh Mamusi** - Cap a la comprensió del mecanisme de la magnetoluminescència en els diradicals basats en triarilmetil
- P15 - Khaoula Merimi** - Estudi computacional de líquids iònics basats en polioxometal·lats
- P16 - Núria Aleixandre** - Representació celular amb CORDA integrant dades experimentals
- P17 - Ana Guimarães** - Difunctionalization of alkenes through DFT calculations
- P18 - Sergi Pujol-Rigol** - Modelització computacional de tasques metabòliques amb GSMM en línies cel·lulars de càncer colorectal
- P19 - Javier Orradre** - Tractament teòric de polielectròlits polifuncionals amb interaccions electrostàtiques fins a segons veïns
- P20 - Blanca Díaz Canals** - Molecular Glues en el disseny de fàrmacs: millorant l'estabilitat de les interaccions proteïna-proteïna per a teràpies innovadores contra el càncer
- P21 - Maria Núria Peralta** - Millorant el mostreig conformacional de complexos proteïna-fragment amb el mètode fragment dissolved Molecular Dynamics (fdMD)
- P22 - Nayanika Das** - Explorant la dinàmica evolutiva entre ortòlegs de GPX6 i comparant-ne l'eficiència catalítica mitjançant càlculs d'enllaç de valència empírics (EVB)
- P23 - Jair Wells / Marc Gruber** - Més enllà de la gestió de dades de química computacional.



# Presentacions Convidades

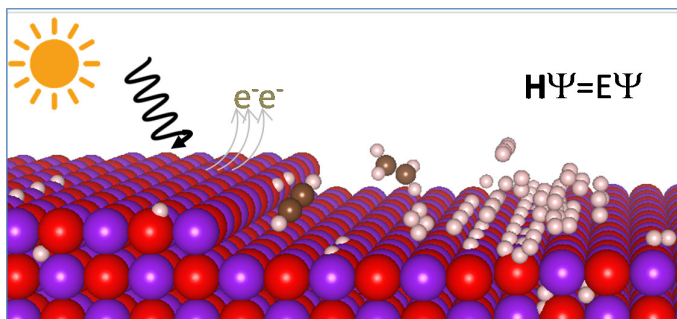
## La química de les superfícies: dels models simples a les aplicacions tecnològiques

Monica Calatayud

*Sorbonne Université, laboratori MONARIS UMR 8233 Paris, França*

Les superfícies sòlides són el nucli de molts fenòmens naturals, científics i industrials, des de l'origen de la vida, les aplicacions quotidianes com el maquillatge, les pintures o la corrosió, fins les solucions tecnològiques als problemes ambientals i energètics actuals. Les superfícies, a pesar de ser minoritàries en els materials, es comporten com un reactiu químic complet: fan enllaços amb les molècules circumdants, reaccionen amb la llum i són capaços de modificar substancialment la composició de l'entorn. En aquesta xerrada abordaré com els mètodes teòrics disponibles, en particular basats en DFT, permeten de modelitzar la reactivitat superficial, il·lustrat amb els exemples següents

- El paper de l'estat superficial (topologia, grau de reducció, dopatge) en materials de TiO<sub>2</sub> i CeO<sub>2</sub> per a la química de l'hidrogen [1,2]
- El disseny de nanopartícules metàl·liques quirals, des de la síntesi fins a la resposta òptica, on la interacció superfície-ligant impulsa la transferència de quiralitat [3]
- Materials actuals (i futurs?) per als reptes industrials i socials, inclosa la caracterització de plàstics [4] i la seguretat nuclear [5]



1. B. Wei and M. Calatayud *Catal. Today* **2022** Catal. Today 397, 113-120
2. J. Vecchietti, MC et al *Appl. Catal B : Environmental* 277 **2020** 119103
3. N. Khalfaoui, MC et al. *Nanoscale* acceptat **2024**
4. Taudul, F. Tielens, M. Calatayud *J. Phys. Chem. B* 128 **2024** 4243–4254
5. M. Saab, S. M. O. Souvi, J. Denis, F. Viro, M. Calatayud *J. Phys. Chem. C* acceptat **2024**

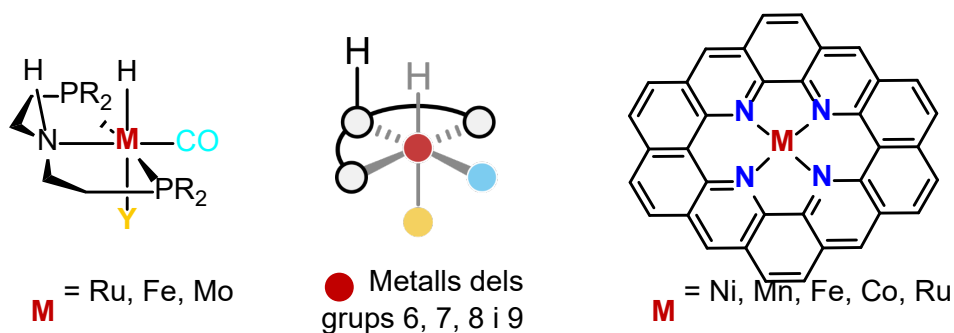
## Disseny de catalitzadors per reaccions d'hidrogenació

Ainara Nova,<sup>a</sup>

*a, Universitat de Oslo, Departament de Química, Oslo, Noruega.  
ainara.nova@kjemi.uio.no*

L'hidrogen s'ha consolidat com el combustible i reactiu químic net del futur, però encara té alguns reptes, com ara ser produït i emmagatzemat de manera sostenible.[1] Una manera de millorar el seu emmagatzematge és fer-lo servir per hidrogenar CO<sub>2</sub> i formar metanol. L'èxit d'aquesta estratègia, però depèn de la millora dels catalitzadors que realitzen aquesta reacció de forma reversible. La majoria de catalitzadors homogènics i heterogenis d'hidrogenació estan formats per centres actius bifuncionals que combinen àcids i bases de Lewis.[2] Per tant, és important entendre i controlar el funcionament d'aquests centres actius.

En aquesta presentació introduiré el treball que estem fent al grup per entendre aquestes reaccions i dissenyar catalitzadors més sostenibles fent servir càlculs DFT i models microcinètics. Això inclou l'estudi de la hidrogenació de CO<sub>2</sub> amb un catalitzador molecular bifuncional, conegut com a Ru(MACHO), i els seus inicis fent servir Fe i Mo. [3] Seguidament, explicaré l'estratègia que estem desenvolupant per dissenyar nous catalitzadors d'aquest tipus fent servir aprenentatge automàtic.[4] Finalment, presentaré els estudis que estem fent per transferir els coneixements obtinguts amb sistemes moleculars a sistemes heterogenis.[5]



1. A. Kumar, P. Daw, D. Milstein, *Chem. Rev.* **2022**, 122, 385
2. D. R. Aireddy, K. Ding, *ACS Catal.* **2022**, 12, 4707
3. (a) Ll. Artús Suárez, Z. Culakova, D. Balcells, W. H. Bernskoetter, O. Eisenstein, K. I. Goldberg, N. Hazari, M. Tilset, A. Nova, *ACS Catal.* **2018**, 8, 8751, (b) T. Leischner, Ll. Artús Suarez, A. Spannenberg, K. Junge, A. Nova, M. Beller, *Chem. Sci.* **2019**, 10, 10566. (c) J. Liu, R. J Rama, T. Cordero-Lanzac, R. Franke, A. Nova ChemRxiv. 2024; doi:10.26434/chemrxiv-2024-p7x5s.
4. H. Kneiding, A. Nova, D. Balcells, *Nat. Comp. Sci.* **2024**, 4, 263.
5. A. EF Denjean, A. Nova, D. Balcells, *ACS Catalysis*, **2024**, 7, 11332.

## Explorant la reactivitat química a l'era de la intel·ligència artificial

Xiuyuan Lu,<sup>a</sup> Alexandre Boucher,<sup>a</sup> Alberto Roldan<sup>\*a</sup>

*a, Cardiff Catalysis Institute, School of Chemistry, Cardiff University,  
Main Building, Park Place, Cardiff, CF10 3AT, UK.*

[RoldanMartinezA@cardiff.ac.uk](mailto:RoldanMartinezA@cardiff.ac.uk)

La catàlisi exerceix un paper fonamental per satisfer les demandes globals d'energia i de productes bàsics. Tanmateix, els catalitzadors i els processos químics existents estan dissenyats per a una economia lineal. Les innovacions en catàlisi poden transformar la fabricació, impulsar la sostenibilitat i donar suport a la transició cap a una economia circular.

Aquesta xerrada presenta els nostres avenços en el disseny atomístic de catalitzadors per a la descomposició de l'amoníac, passant de nanopartícules convencionals de metalls de transició a catalitzadors d'un àtom (SACs, per les seves sigles en anglès) ancorats en estructures de carboni dopades amb nitrogen. La descomposició de l'amoníac ofereix un subministrament estable d'hidrogen per a tecnologies d'energia neta.<sup>[1]</sup> No obstant això, el cost elevat i la baixa eficiència energètica dels catalitzadors actuals dificulten la seva implementació a gran escala. Els SACs, que maximitzen l'eficiència atòmica garantint que cada àtom participi en la catàlisi, ofereixen una alternativa atractiva.<sup>[2]</sup> Els nostres resultats revelen diferències significatives en els mecanismes de reacció entre les superfícies de metalls de transició i els SACs. Tot i que el Ru és el "golden standard" per a la descomposició de l' $\text{NH}_3$ , al SAC, l'enverinament per nitrogen en limita l'eficàcia.

Els SACs es veuen limitats per la capacitat d'adsorció.<sup>[3]</sup> En canvi, els clústers metàl·lics d'un tamany subnanomètric combinen l'eficiència atòmica amb una major flexibilitat d'adsorció.<sup>[4]</sup> Per identificar configuracions estables de clústers, hem aplicat mètodes d'optimització global basats en la teoria del funcional de la densitat (DFT) i hem desenvolupat un potencial interatòmic basat en aprenentatge automàtic centrat en àtoms (ML-IP). Hem entrenat arquitectures de xarxes neuronals capaces de predir energies i forces amb una precisió excepcional. Aquest mètode permet avaluar milers d'estructures suportades, revelant morfologies prevalents i comportaments catalítics en condicions de reacció.

- [1] S. Chiuta, R. C. Everson, H. W. J. P. Neomagus, P. Van Der Gryp, D. G. Bessarabov, *Int. J. Hydrogen Energy* **2013**, *38*, 14968–14991.
- [2] Y. Qiu, X. Peng, F. Lü, Y. Mi, L. Zhuo, J. Ren, X. Liu, J. Luo, *Chem. - An Asian J.* **2019**, *14*, 2770–2779.
- [3] L. Kuai, Z. Chen, S. Liu, E. Kan, N. Yu, Y. Ren, C. Fang, X. Li, Y. Li, B. Geng, *Nat. Commun.* **2020**, *11*, 48.
- [4] L. Liu, D. M. Meira, R. Arenal, P. Concepcion, A. V. Puga, A. Corma, *ACS Catal.* **2019**, *9*, 10626–10639.

## Modelització "in silico" de la fotoluminescència

Daniel Escudero,<sup>a</sup>

*a, Department of Chemistry, KU Leuven, Celestijnenlaan 200F, 3001,  
Leuven, Belgium*

*e-mail: daniel.escudero@kuleuven.be.*

En aquesta contribució presento protocols computacionals per modelar la fotoluminescència en sistemes moleculars que van més enllà de la modelització habitual d'energies d'emissió. Els nostres protocols combinen càlculs químics quàntics d'última generació, teories de la desactivació de l'estat excitat (és a dir, basades en la regla d'or de Fermi)[1] juntament amb la dinàmica semiclassical no adiabàtica pels estats excitats per permetre la determinació quantitativa dels temps de vida dels estats excitats i rendiments quàntics de fotoluminescència. En particular, presento protocols per modelar la fluorescència anti-Kasha en sistemes moleculars (és a dir, fluorescència d'estats excitats superiors), [2,3] però també protocols per modelar processos d'encreuament entre sistemes.[4] Finalment, es presenten els primers intents de capturar esdeveniments de fluorescència en sistemes moleculars dins d'un marc dinàmica semiclassical no adiabàtica.[5] Aquestes investigacions contribueixen als nostres esforços continus per assolir determinacions quantitatives de la fotoquímica *ab initio*. Tractant en igualtat de condicions els processos radiatius i no radiatius, els nostres mètodes permeten aconseguir una pel·lícula molecular completa de la desactivació de l'estat excitat.

[1] M. T. do Casal, K. Veys, M. H. E. Bousquet, D. Escudero, D. Jacquemin, *J. Phys. Chem. A*, **127**, 10033 (2023)

[2] K. Veys, D. Escudero, *J. Phys. Chem. A*, **124**, 7228 (2020)

[3] K. Veys, D. Escudero, *Acc. Chem. Res.*, **55**, 2698 (2022)

[4] K. Veys, M. H. E. Bousquet, D. Jacquemin, D. Escudero, *J. Chem. Theory and Comput.*, **19**, 9344 (2023) [5] M. Pérez-Escribano, J. Jankowska, G. Granucci, D. Escudero, *J. Chem. Phys.*, **158**, 124104 (2023)

## Ensumant noves funcions dels receptors de l'olfacte amb simulacions de dinàmica molecular

Mercedes Alfonso-Prieto,<sup>a</sup> Riccardo Capelli,<sup>b</sup>  
 Lorenza Pirona,<sup>b</sup> Federico Ballabio,<sup>b</sup>

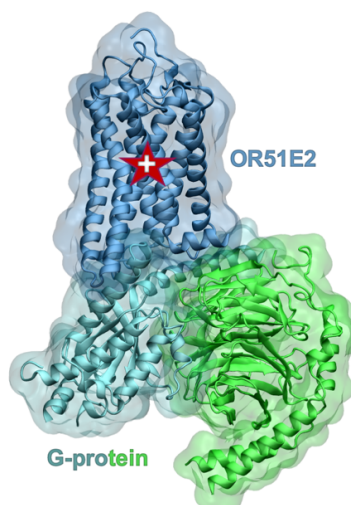
*a, Forschungszentrum Jülich, INM-9 Computational Biomedicine, Jülich, Alemanya.*

*b, Università degli Studi di Milano, Department of Biosciences, Milano, Itàlia.*

[m.alfonso-prieto@fz-juelich.de](mailto:m.alfonso-prieto@fz-juelich.de)

Els receptors de l'olfacte (ORs) són proteïnes de membrana que constitueixen el 50% de la família dels receptors acoblats a proteïna G (GPCRs). Els ORs estan involucrats en la detecció d'olors en el nas, però també s'expressen en altres parts del cos, on participen en diversos processos fisiològics i patològics que encara no estan del tot caracteritzats. Per tant, desxifrar la seva estructura tridimensional pot ajudar a entendre aquestes funcions extranasals i dissenyar nous fàrmacs. Aprofitant els avenços recents en tècniques de predicció d'estructura de proteïnes i criomicroscòpia electrònica, hem utilitzat dinàmica molecular clàssica per simular *in silico* la inactivació d'un receptor olfactiu prototípic, OR51E2, i l'efecte de diferents ions.[1,2]

A diferència de la majoria dels membres de la família GPCR, els ORs contenen dos residus acídics en el lloc d'unió d'ions, suggerint que tant cations monovalents com divalents poden unir-s'hi. Les nostres simulacions mostren que el calci pot estabilitzar l'estat inactiu de l'OR51E2 més eficientment que l'ió més comú, el sodi, suggerint un nou mecanisme d'inactivació pels ORs. Pendent de validació experimental, el nostre estudi computacional ressalta la capacitat del modelat i simulacions biomoleculares per entendre la relació estructura-funció de proteïnes.



1. M. Alfonso-Prieto, R. Capelli, *J. Chem. Inf. Model.* **2023**, 63, 2911–2917.
2. L. Pirona, F. Ballabio, M. Alfonso-Prieto, R. Capelli, *J. Chem. Inf. Model.* **2024**, 64, 2971–2978.

# Presentacions Orals

## Desxifrant la modulació al·lostèrica de GPCRs. Receptor cannabinoide 1 com a sistema model.

Alejandro Cruz<sup>a</sup> and Arieh Warshel<sup>a</sup>

*a, University of Southern California, Department of Chemistry, Los Angeles, California, 90089-1062, United States  
cruzsaetz@usc.edu; alejandro.cruz.saez@upc.edu*

Els receptors acoblats a proteïnes G (GPCRs) són una superfamília de proteïnes integrals de membrana constituïts per 7 hèlixs  $\alpha$  transmembrana (TM) que participen en la majoria de respostes cel·lulars a estímuls externs. El mal funcionament d'aquets processos de transducció de senyal és una de les causes subjacents de moltes patologies humanes greus.[1,2] Aquest fet fa que els GPCRs siguin la família més gran de proteïnes amb capacitat de ésser el blanc de fàrmacs. No obstant això, només una petita part dels GPCRs amb aquesta propietat s'han explotat farmacològicament. Una causa recurrent és que els fàrmacs actuen al lloc ortoestèric dels GPCRs, el qual acostuma a presentar un alt grau de conservació. Aquesta casuística fa que apareguin efectes secundaris degut a la incapacitat per a distingir entre els subtipus de receptors homòlegs. Els moduladors al·lostèrics són una alternativa prometedora ja que sí exhibeixen especificitat envers els subtipus de receptors donat que els llocs al·lostèrics estan menys conservats i, a més, permeten modular la resposta dels lligands ortoestèrics. [3] Per tot això, és interessant aconseguir una millor comprensió de la modulació al·lostèrica del GPCRs. No obstant, per a progressar en aquesta direcció és de vital importància ser capaç de distingir els llocs al·lostèrics reals dels aparents, determinar el/s modes d'unió dels moduladors al·lostèrics, determinar a nivell molecular l'origen de la modulació al·lostèrica i calcular de manera fiable tant l'afinitat (constant de dissociació;  $K_B$ ) com la cooperativitat (factor de cooperativitat;  $\alpha$ ) dels moduladors al·lostèrics. S'han abordat totes aquestes qüestions pel receptor cannabinoide 1 (CB1R) donat la seva rellevància, la disponibilitat d'estructures experimentals i coneixement dels seus llocs i moduladors al·lostèrics. [1,4] La modelització d'aquests sistemes biofísics és molt complexa, cosa que s'ha resolt utilitzat tant un model implícit de membrana com un model *coarse-grained* (CG) per calcular l'energia lliure conformacional. Ambdós models s'han desenvolupat específicament per a proteïnes de membrana resultant ser molt efectius.[5,6] S'ha aconseguit reproduir  $K_B$ s i  $\alpha$ s experimentals de diferents moduladors al·lostèrics de CB1R i associar la modulació al·lostèrica a un desplaçament de l'extrem extracel·lular de TM4. [7] El càlcul de  $K_B$ s i  $\alpha$ s de manera fiable obre la porta a l'optimització i/o disseny racional de moduladors al·lostèrics.

### Referències

- [1] P. Pacher, S. Batkai, G. Kunos, *Pharmacol. Rev.* 58, 389 (2006)
- [2] J. Wang, C. Gareri, H. A. Rockman, *Circ. Res.* 123, 716 (2018)
- [3] E. A. Wold, J. Chen, K. A. Cunningham, J. Zhou, *J. Med. Chem.* 62, 88 (2019)
- [4] X. Yang, *et al.*, *Nat. Chem. Biol.* 18, 831 (2022)
- [5] I. Vorobyov, I. Kim, Z. T. Chu, A. Warshel, *Proteins* 84, 92 (2016)
- [6] C. Bai, *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* 143, 11044 (2021)
- [7] A. Cruz, A. Warshel, *Proteins* (2024; in press)



## Recombinació radiativa i no radiativa en petits nanoclústers de TiO<sub>2</sub> accelerada a través de reaccions d'hidratació

Miguel Recio-Poo,<sup>a\*</sup> Mohammad Shakiba,<sup>b</sup> Francesc Illas,<sup>a</sup> Stefan T. Bromley,<sup>a,c</sup>  
Alexey V. Akimov,<sup>b</sup> and Ángel Morales-García<sup>a</sup>

*a, Departament de Ciència de Materials i Química Física & Institut de Química Teòrica i Computacional (IQTCUB), Universitat de Barcelona, c/Martí i Franquès 1-11, 08028 Barcelona, Spain*

*b, Department of Chemistry, University at Buffalo, The State University of New York, Buffalo, NY, 14260 USA.*

*c, Institució Catalana de Recerca i Estudis Avançats (ICREA), Passeig Lluís Companys 23, 08010 Barcelona, Spain.*

\*miquelrecio@ub.edu

Hem investigat la dinàmica de recombinació radiativa i no radiativa en una sèrie de petits nanoclústers de titani deshidratats i hidratats amb fórmules generals de (TiO<sub>2</sub>)<sub>4</sub>(H<sub>2</sub>O)<sub>m</sub> ( $m = 0, 2, 4$ ) i (TiO<sub>2</sub>)<sub>8</sub>(H<sub>2</sub>O)<sub>m</sub> ( $m = 0, 2, 5$ ). Hem trobat que l'augment del grau d'hidratació dels clústers de titani augmenta generalment les seves energies d'excitació i els acoblaments no adiabàtics, accelerant respectivament la recombinació radiativa i no radiativa. A diferència d'altres treballs reportats anteriorment sobre nanoclústers de TiO<sub>2</sub>, la nostra metodologia de dinàmica molecular no adiabàtica (NA-MD) utilitza la teoria del funcional de densitat dependent del temps (TD-DFT) amb funcionals híbrids de densitat, coneguda per la seva alta fiabilitat i capacitat per capturar efectes excitònics en la dinàmica dels estats excitats. D'aquesta manera, a més de la naturalesa fisicoquímica del nostre estudi, presentem una extensa anàlisi comparativa de diversos aspectes metodològics, com ara el paper de l'elecció del funcional de densitat, el tipus de dinàmica molecular i l'efecte de l'algorisme de salt superficial. Per exemple, una de les nostres troballes importants és que els temps de recombinació depenen dèbilment de l'elecció del funcional de densitat utilitzat en els càlculs dels estats excitats, ja sigui un funcional pur o híbrid.

En resum, el nostre estudi aporta nous coneixements mecanístics sobre la dinàmica radiativa i no radiativa dels estats electrònics excitats en materials prototípics per a l'energia solar.[1][2] Les correlacions trobades entre les propietats estructurals i dinàmiques d'aquests sistemes amb els temps calculats contribueixen a una millor comprensió dels processos quàntics a les superfícies dels nanoclústers. A més, les nostres avaluacions metodològiques dels mètodes computacionals per a aquest tipus de simulacions proporcionen una orientació útil per a la selecció racional d'estratègies computacionals adequades.

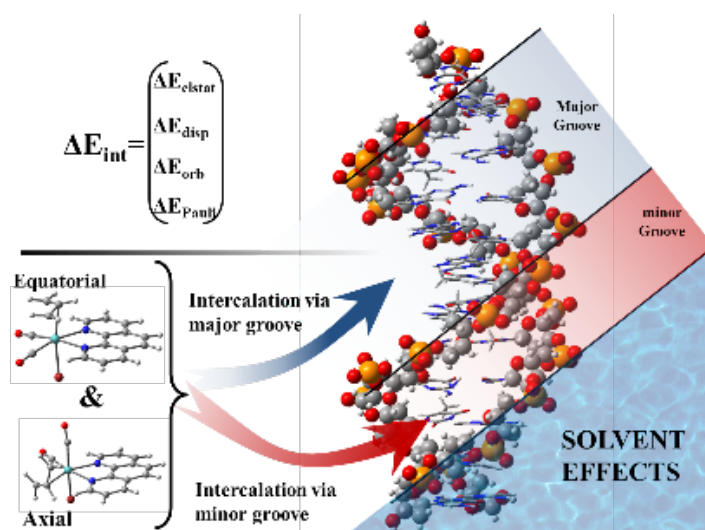
1. J. Schneider, M. Matsuoka, *Chem. Rev.* **2014**, *114*, 9919-9986.
2. M. Rafique, S. Hajra, *ACS omega* **2023**, *8*(29), 25640-25648.

## Ampliant coneixements en la interacció de lligants i complexos metàl·lics basats en fenantrolina i polioxometalats amb el ADN dúplex i quadruplexes-G

Adrià Gil,<sup>a</sup>

*a, Universitat de Lleida, Departament de Química, Física i Ciències Ambientals i del Sòl, Lleida, Espanya.*

En aquest treball s'amplien els coneixements que hem adquirit pel que fa als avanços en l'ús d'ADN canònic i no canònic com a diana terapèutiques. Aquesta modalitat de tractaments mèdics s'utilitza com una forma de medicina molecular específica contra el creixement de cèl·lules cancerígenes. No obstant, a causa de la preocupació creixent pel que fa a la resistència bacteriana als antibiòtics convencionals, aquesta estratègia mèdica s'està explorant també en aquest camp. S'han estudiat fins a tres estratègies per a l'ús del ADN com a diana terapèutica en les nostres línies de recerca durant els darrers anys: (1) la intercalació de derivats de fenantrolina amb l'ADN dúplex; (2) la interacció de complexos metàl·lics que contenen fenantrolina amb els quadruplexes-G; i (3) l'activitat de polioxometalats de Mo i altres òxids de Mo com a fosfoesterases artificials a fi de catalitzar la hidròlisi de l'enllaç fosfoèster en l'ADN. En aquest aspecte, alguns dels nostres resultats computacionals són prometedors pel que fa a la interacció favorable de molècules petites amb l'ADN i donarien lloc a uns efectes citotòxics contra les cèl·lules tumorals i els microorganismes. Així, els nostres resultats obren la porta a l'aplicació farmacèutica i mèdica dels compostos que es proposen.[1]



1. A. Sánchez-González, N. A. G. Bandeira, I. Ortiz de Luzuriaga, F. F. Martins, S. Elleuchi, K. Jarraya, J. Lanuza, X. Lopez, M. J. Calhorda, A. Gil, *Molecules* **2021**, 26, 4737.

## Explorant mecanismes no difusius per a la formació d'acetaldehid al medi interestel·lar: un estudi computacional

Berta Martínez-Bachs,<sup>a</sup> Albert Rimola,<sup>a</sup>

*a, Universitat Autònoma de Barcelona, Departament de Química,  
Bellaterra, Catalunya, Espanya.  
berta.martinez@uab.cat*

La detecció de certes molècules orgàniques complexes interestel·lars (iCOMs), com l'acetaldehid ( $\text{CH}_3\text{CHO}$ ), el metilformat ( $\text{CH}_3\text{OCHO}$ ) o el dimetil èter ( $\text{CH}_3\text{OCH}_3$ ) entre d'altres, en els entorns més freds del medi interestel·lar, com les nebuloses fosques o els nuclis preestel·lars, suposa un desafiament significatiu per als models astroquímics actuals. Aquests models es basen principalment en la química difusiva en la superfície dels grans interestel·lars. A temperatures al voltant de 10 K, els radicals es desplacen molt lentament sobre els mantells de gel, o fins i tot gens, dificultant així reaccions eficients entre ells i impedit la formació d'iCOMs. Diversos mecanismes han estat proposats per explicar la presència d'iCOMs en aquests nuclis freds, alguns dels quals es basen en vies no difusives. [1]-[5] En aquesta contribució, investiguem un mecanisme de formació no difusiu per a l'acetaldehid. Explorem una reacció de tres cossos, en què els radicals es formen en estreta proximitat entre si, facilitant una reacció immediata, seguint els mecanismes proposats per Jin i Garrod (2020). [6] Aquestes reaccions es simulen mitjançant dinàmiques moleculars *ab initio*, utilitzant un model d'aigua cristal·lina per representar les superfícies de gel interestel·lar. Els resultats indiquen que aquestes reaccions poden conduir a la formació d'acetaldehid, tot i que també cal considerar canals competitiu com les abstraccions d'hidrogen.

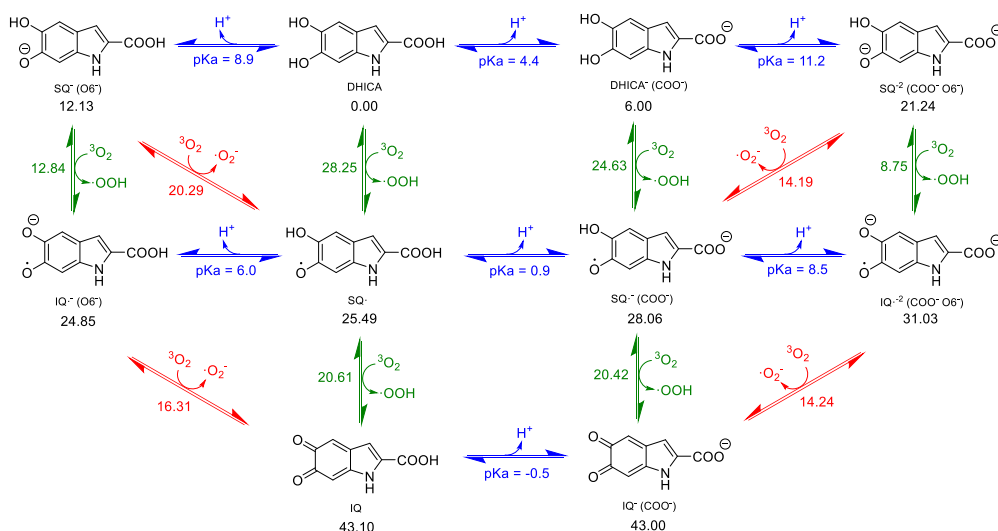
1. N. Balucani et al., MNRAS **2015**, 449, L16
2. J. B. Bergner et al., ApJ **2017**, 845, 29
3. Q. Chang, E. Herbst, ApJ **2016**, 819, 145
4. M. Ruaud et al., MNRAS **2015**, 447, 4004
5. C. N. Shingledecker et al., ApJ **2018**, 861, 20
6. M. Jin, R. T. Garrod, ApJS **2020**, 249, 26

## Modelant el mecanisme de formació de l'eumelanina a partir de monòmers de DHI

Daniel Bosch,<sup>a</sup> Lluís Blancafort<sup>a</sup>

<sup>a</sup>, Departament de Química, Institut de Química Computacional i Catàlisi, Universitat de Girona. Facultat de Ciències, C/M. A. Capmany 69, 17003 Girona, Espanya

L'eumelanina és una de les varietats més comunes de la melanina i és el biopolímer responsable de la fotoprotecció en els éssers vius[1]. És molt prometedora en l'anomenada ciència de materials[2], però la seva estructura detallada no s'ha caracteritzat experimentalment[3]. La creació de nous models teòrics és necessària per poder millorar el nostre coneixement de la funció de l'eumelanina i poder-ne aprofitar les seves propietats, però l'enorme quantitat d'oligòmers possibles ha fet que el modelatge d'aquesta no sigui possible fins ara. L'eumelanina està composta d'oligòmers d'àcid 5,6-dihidroxiindole-2-carboxílic (DHI), formats mitjançant un mecanisme d'acoblament oxidatiu, on la reacció d'oligomerització té lloc en presència d'oxigen a pH bàsic. Aquí s'exposen els resultats de la simulació d'un model cinètic basat en càlculs DFT del mecanisme de formació de l'eumelanina en l'etapa d'iniciació (incloent reaccions d'oxidació de monòmers de DHI a través d'abstraccions d'hidrogen o transferència electrònica), i també en l'etapa de formació dels oligòmers (amb mecanismes d'acoblament de cada una de les espècies obtingudes en l'iniciació). Diverses anàlisis s'han dut a terme variant les condicions inicials de les simulacions, com són el pH i les concentracions inicials de les espècies presents, a fi d'obtenir informació rellevant sobre l'etapa inicial de la formació de l'eumelanina.



1. M. d'Ischia, K. Wakamatsu, F. Cicoira et al., *Pigment Cell Melanoma Res.* **2015**, *28*, 520-544.
2. E. Di Mauro, R. Xu, G. Soliveri, C. Santato, *MRS Commun.* **2017**, *7*, 141-15.
3. C.-T. Chen, F. J. Martin- Martinez, G. S. Jung, M. J. Buehler, *Chem. Sci.* **2017**, *8*, 1631-1641

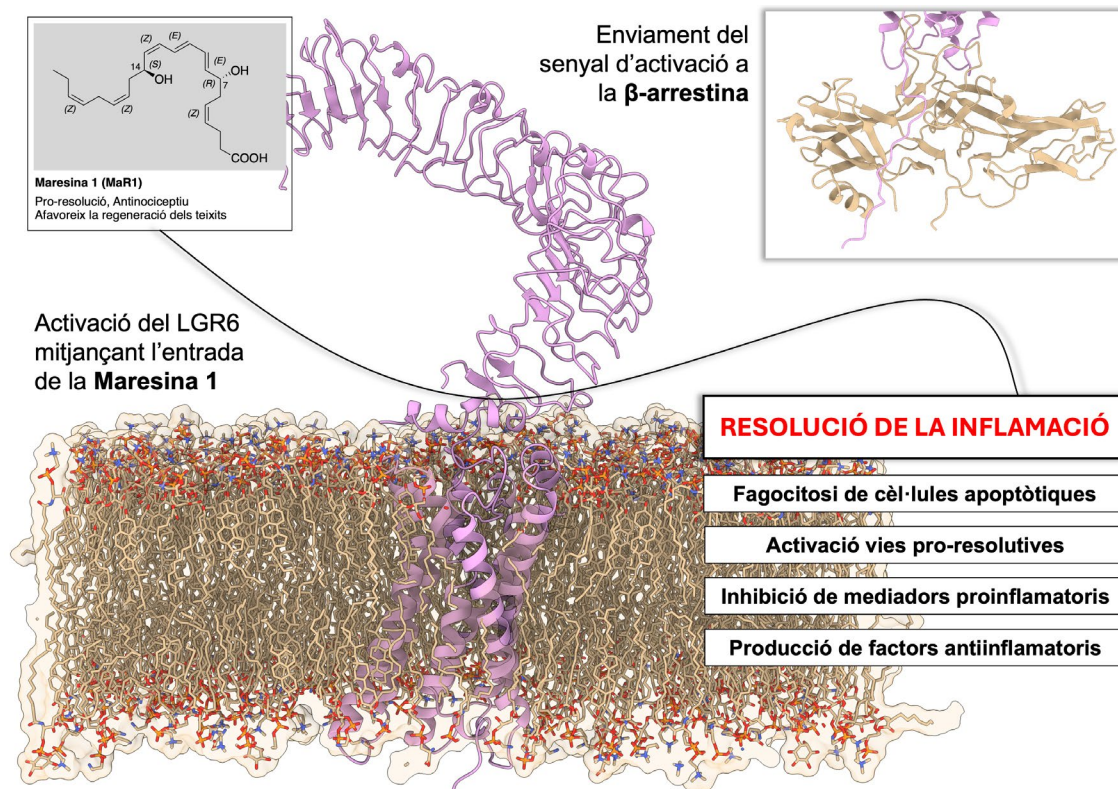
## El paper de la MaR1 en l'activació del receptor LGR6: Un nou camí cap a la regulació inflamatòria

Álex Pérez-Sánchez, Mireia Garcia-Viloca, Àngels González-Lafont i José M. Lluch

*Universitat Autònoma de Barcelona, Departament de Química, Unitat de Química Física, Cerdanyola de Vallès, Barcelona, Espanya.*

La maresina 1 (MaR1) és un mediador lipídic derivat de l'àcid docosahexaenoic (DHA) que modula la inflamació i s'ha identificat recentment com un activador estereoselectiu del receptor LGR6, un GPCR que estimula les funcions pro-resolutives dels fagòcits. Aquest estudi investiga l'activació de LGR6 per la MaR1 mitjançant simulacions de dinàmica molecular, i altres tècniques, amb l'objectiu d'entendre el funcionament del receptor pel disseny d'anàlegs sintètics que administrats exògenament resolguin la inflamació i redueixin els efectes secundaris que tenen els antiinflamatoris. A més, la identificació de LGR6 com a supressor tumoral i el seu paper en la reparació de teixits obre noves vies per al desenvolupament de fàrmacs oncològics.

Els resultats mostren que la MaR1 s'uneix específicament a LGR6, provocant canvis conformacionals que faciliten la interacció amb l' $\beta$ -arrestina i activen vies senyalitzadores antiinflamatòries. També, la maresina 2 (MaR2), el leucotriè B4 (LTB4) i d'altres mediadors lipídics, s'han identificat com a potencials agonistes de LGR6.

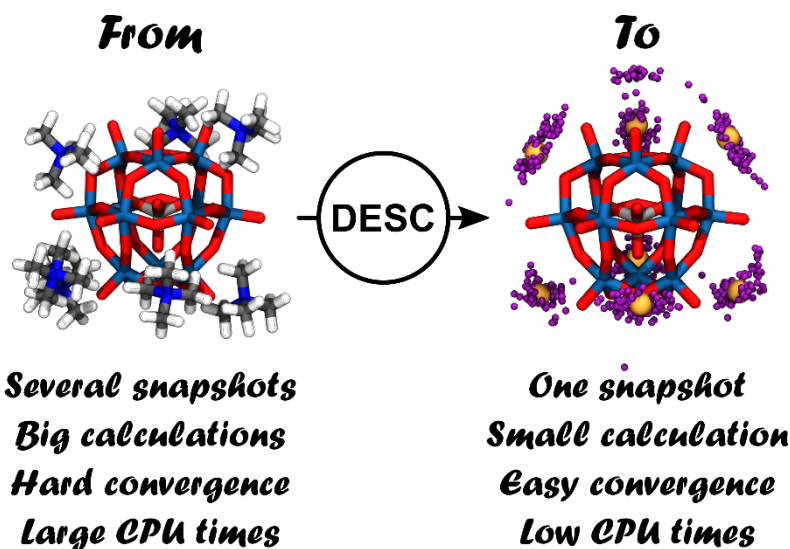


## DESC: una estratègia computacional automatitzada i eficient per a tenir en compte l'efecte dels contraions en solució

Albert Masip-Sánchez,<sup>a</sup> Josep M. Poblet,<sup>a</sup> Xavier López<sup>a</sup>

*a, Universitat Rovira i Virgili, Departament de Química Física i Inorgànica, Tarragona, Espanya  
albert.masip@urv.cat*

Les propietats i el comportament dinàmic de les molècules en solucions líquides depenen del dissolvent i d'altres espècies, o co-soluts, incloent-hi els electròlits (si n'hi ha), especialment quan es produeix associació o aparellament molecular. En els càlculs de mecànica quàntica (QM), l'estructura electrònica de les molècules dissoltes s'obté habitualment aplicant models de dissolvent implícit (ISMs, per les seves sigles en anglès). Tanmateix, els ISMs no poden diferenciar, per exemple, entre tipus de cations  $\text{Cs}^+$  enfront de  $n\text{Bu}_4\text{N}^+$ , cosa que limita l'exactitud en la captura d'interaccions específiques del solut. Per abordar aquest problema en els càlculs QM, sovint és necessari un tractament explícit del co-solut, típicament un contraió, un enfocament complex a causa de la definició de posicions representatives del co-solut, la convergència numèrica i el cost computacional elevat per a espècies voluminoses.



Es presenta una nova estratègia anomenada **Dynamic Environmental Effects in Solution (DESC)**, que utilitza dades de dinàmica molecular clàssica (MD) per alimentar els càlculs QM, permetent incloure els efectes específics dels contraions amb més detall i eficiència que els ISMs. DESC és especialment avantatjós en casos on l'aparellament o l'agregació iònica són significatius, oferint resultats química-ment representatius en càlculs QM a una petita fracció del cost computacional associat al tractament explícit dels contraions. Aquest treball presenta dades MD sobre sistemes de solut-contraió-dissolvent, detalla la metodologia DESC i l'aplica a solucions de polioxometal·lats i altres sistemes rellevants, comparant els resultats amb càlculs de referència QM/ISM.

## Disseny d'Aproximacions Semiempíriques Robustes del Funcional de la Densitat per a Energies i Propietats

Andrei Paulau,<sup>a</sup> Josep Maria Luis,<sup>b</sup> Pedro Salvador,<sup>b</sup>  
Eloy Ramos-Cordoba,<sup>c</sup> Eduard Matito<sup>a</sup>

*a, Donostia International Physics Center, Donostia, Espanya.*

*b, Institut de Química Computacional i Catalisi, Girona, Espanya.*

*c, Institut de Química Avançada de Catalunya, Barcelona, Espanya.*

*andrei.paulau@dipc.org*

Tot i que la teoria del funcional de la densitat (DFT) és el mètode més utilitzat per calcular les propietats moleculars de molècules de més d'unes dotzenes d'àtoms, la gran majoria de les aproximacions del funcional de la densitat (DFA) modernes no són adequades per calcular les propietats vibracionals [1]. Això es manifesta en errors en les freqüències, intensitats i contribucions de relaxació nuclear a les propietats de resposta òptica no lineal de fins a milers per cent, sobretot en sistemes amb enllaços d'hidrogen, iònics o interaccions no covalents.

Mostrem que l'origen fonamental d'aquest problema rau en les oscil·lacions no físiques de les derivades de la densitat d'energia de bescanvi i correlació a l'espai real respecte a pertorbacions externes. Observem una connexió entre la magnitud de les oscil·lacions amb comportaments específics de les DFAs a diferents valors del gradient reduït de la densitat. Aquests resultats han portat al desenvolupament d'una estratègia per dissenyar funcionals robusts per calcular propietats moleculars. A partir d'aquí, hem dissenyat unes DFAs que es basen en l'estructura matemàtica de la família de funcionals  $\omega$ B97, però que són robusts per calcular propietats moleculars alhora que retenim en gran mesura l'exactitud dels funcionals originals.

Finalment, afegint expressament quantitats dependent de la distància interelectrònica en l'energia de correlació, construïm una DFA de correlació que només depèn de la densitat i el seu gradient. Aquesta nova DFA no només és robusta per al càlcul de propietats moleculars, sinó que també té l'avantatge competitiu de donar millors resultats mitjans en els càlculs de l'energia electrònica en comparació amb les millors aproximacions semiempíriques del funcional de densitat.

1. S.P. Sitkiewicz, R. Zalesny, E. Ramos-Cordoba, J.M. Luis, E. Matito, *J. Phys. Chem. Lett.*, **2022**, *13*, 5963-5968.
2. A. Paulau, J.M. Luis, P. Salvador, E. Ramos-Cordoba, E. Matito, *en preparació*.

## Dinàmiques quàntiques nuclears amb la introducció d'un pols explícit

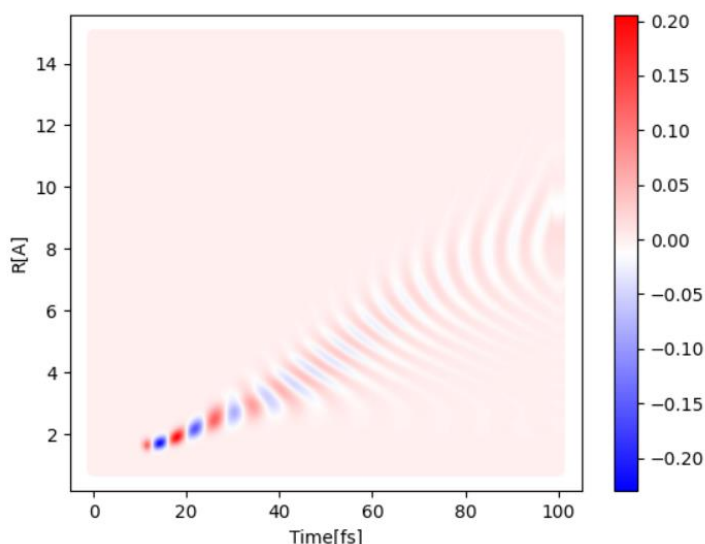
M. Alías-Rodríguez,<sup>a</sup> C. González-Collado,<sup>b</sup> A. Palacios<sup>b</sup> i F. Martín<sup>a,b</sup>

*a, IMDEA Nanociencia, Madrid, Spain*

*b, Departamento de Química, UAM, 28049 Madrid, Spain*

En les últimes dècades, l'espectroscòpia resolta en el temps mitjançant experiments de tipus "pump-probe" ens ha permès aprofundir en el coneixement de la fotoquímica.[1-2] Arribant a obtenir resolucions temporals molt baixes, gràcies als polsos d'attosegons, pel qual L'Huilier, Agostini i Krausz foren guardonats amb el Premi Nobel de Física l'any 2023. Tot i la espectacularitat de la troballa i els encomiables esforços dedicats per part de la comunitat experimental, la interpretació dels espectres és extremadament complicada degut a la relació senyal soroll, la escala temporal aconseguida o el solapament de múltiples senyals. És per això, que un potent suport teòric és fonamental per l'avenç en el control d'aquests fenòmens ultra ràpids.[3]

En l'actual estudi, hem creat un Hamiltonià model per la molècula diatòmica LiH, incloent les energies adiabàtiques, els acoblaments no adiabàtics, els dipols permanents i de transició pels estats de multiplicitat singlet de més baixa energia al llarg de la distància internuclear, a més d'un camp elèctric dependent del temps. Com a resultat obtenim, no només la evolució de les poblacions en el temps sinó també les coherències entre estats. Aquestes ens proporcionen una informació addicional ja que no només informen del mòdul del paquet d'ona nuclear, també ho fan de la fase corresponent.



**Figura 1.** Part real de la coherència  $\Sigma_2\text{-}\Sigma_4$  al llarg de l'espai i el temps.

1. S. Straub, et al. *Angew. Chem. Int. Ed.* **2021**, 60, 2519-2525.
2. S. Zerdane et al. *J. Chem. Phys.* **2019**, 151, 171101.
3. Alías-Rodríguez et al. *J. Phys. Chem. Lett.* **2023**, 14, 38, 8571-8576.



## Explorant el mecanisme d'acció d'agents antivirals en Hemaglutinina: unió de l'inhibidor M090

Aitor Valdivia,<sup>a,b</sup> Maria Rocha,<sup>a,c</sup> F. Javier Luque.<sup>a,b,d</sup>

<sup>a</sup> Departament de Nutrició, Ciències de l'Alimentació i Gastronomia, Facultat de Farmàcia i Ciències de l'Alimentació - Campus Torribera, Universitat de Barcelona, Prat de la Riba 171, 08921 Santa Coloma de Gramenet, Spain

<sup>b</sup> Institut de Biomedicina (IBUB), Universitat de Barcelona

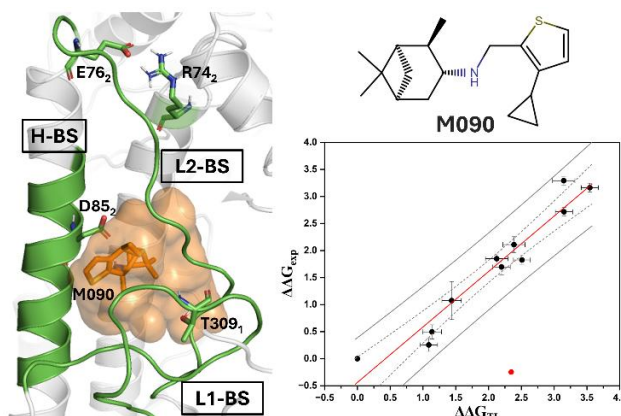
<sup>c</sup> Department of Life Sciences, University of Coimbra, Calçada Martim de Freitas, 3000-456 Coimbra, Portugal

<sup>d</sup> Institut de Química Teòrica i Computacional (IQTCUB), Universitat de Barcelona.  
avaldivia@ub.edu

El virus de la grip causa aproximadament mig milió de morts cada any a tot el món. L'hemaglutinina (HA) és una diana atractiva per a la teràpia antiviral degut al seu paper essencial en la mediació de l'entrada del virus a la cèl·lula hoste. Al llarg dels anys, s'han explorat diversos inhibidors per impedir la interacció de les cèl·lules amfitrions amb l'HA o bé evitar l'alliberament induït per pH del pèptid de fusió, que desencadena el procés de fusió de la membrana.<sup>1</sup>

Dintre dels inhibidors del procés de fusió, l'inhibidor tipus pinanamina més potent, M090, va mostrar una EC<sub>50</sub> de 0.3 µM en cèl·lules MDCK infectades pel virus H1N1 A/Guangzhou/GIRD/07/2009, valors d'EC<sub>50</sub> de 0.34 i 0.1 µM en un assaig de reducció de placa contra H1N1 A/California/07/2009 i A/Texas/04/2009, respectivament, i valors d'EC<sub>50</sub> en un rang 1.5-6.9 µM en assajos citopàtics realitzats en diverses soques (H1N1, H3N2, H7N3 i H9N2). A més, els assajos van revelar l'ocurrència de la mutació E74<sub>2</sub>→D al subdomini HA2.<sup>2</sup>

En aquest estudi, s'han utilitzat simulacions de dinàmica molecular (MD) i càlculs d'integració termodinàmica (TI) per examinar la unió de M090, explorant el seu mode d'unió a HA. Aquest anàlisi ha revelat l'efecte de protecció hidrofòbica desenvolupat pel grup 3-ciclopropiltiofè en M090. A més, els resultats permeten explicar les diferències d'activitat per una desena de derivats amb una potència que difereix en 250 vegades. Finalment, l'estudi permet explicar l'efecte negatiu de la mutació E74<sub>2</sub>→D induïda per la resistència a l'inhibidor, que afebliria la unió augmentant la flexibilitat estructural del segment L2-BS.



1. Chen Z., et al.. *Pharmaceuticals (Basel)*. **2021**, 14:587. b) Zhang Q., et al.. *Expert Opin Pharmacother*. **2021**, 22:715–28.
2. Zhao, X., et al.. *J. Med. Chem.* **2018**, 61, 5187–5198.

## Excitació de fotosensibilitzadors de porfirina per protons accelerats

Judit Gálvez,<sup>a</sup> Lluís Blancafort,<sup>a</sup>

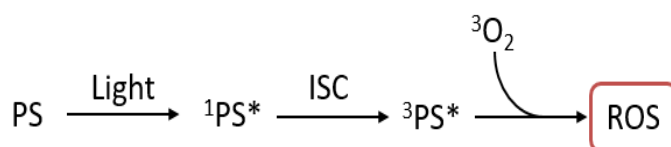
*a, Institut de Química Computacional i Catàlisi, Universitat de Girona,  
Girona, Espanya  
judit.galvez@udg.edu*

La teràpia fotodinàmica (PDT) proveeix una activitat citotòxica selectiva envers els tumors d'un mode mínimament invasiu. Consisteix en l'excitació del fotosensibilitzador (PS) al seu primer estat excitat utilitzant llum. A continuació, hi ha un canvi de multiplicitat del l'estat singlet al triplet a través d'un encreuament intersistema (ISC). Finalment, es produeix una transferència d'energia entre el PS i una molècula d'oxigen en el seu estat fonamental (<sup>3</sup>O<sub>2</sub>) que resulta en la generació d'espècies reactives d'oxigen (ROS) (Esquema 1). [1]

El principal problema de la PDT és que la profunditat de penetració de la llum en teixits és només d'uns pocs mil·límetres. Per altra banda, els protons accelerats poden depositar una gran quantitat d'energia radiant a qualsevol profunditat seleccionada. [2] Per tant, la combinació de PDT amb teràpia de protons pot conduir cap a un tractament dirigit i eficient que pot arribar a diferents òrgans sense ser invasiu.

Grigalavicius et al. [3] demostren una excitació del PS per protons accelerats que generen ROS i fluorescència que concorden amb la obtinguda per l'excitació induïda per fotons.

En aquest estudi volem esclarir el mecanisme pel qual la irradiació amb protons accelerats pot resultar en una excitació electrònica. Per fer-ho, utilitzem dinàmiques moleculars per a simular la col·lisió de protons i TD-DFT per calcular l'energia de l'excitació electrònica després de la col·lisió.



Esquema 1. Mecanisme general de la teràpia fotodinàmica.

1. P. Agostinis, K. Berg, K.A. Cengel, T.H. Foster, A.W. Girotti, S.O. Gollnick, S.M. Hahn, M.R. Hamblin, A. Juzeniene, D. Kessel, M. Korbelik, J. Moan, P. Mroz, D. Nowis, J. Piette, B.C. Wilson, J. Golab, *CA: Cancer J. Clin.* **2011**, *61*, 250–281.
2. W. P. Levin, H. Kooy, J. S. Loeffler, T. F. DeLaney, *Br. J. Cancer*, **2005**, *93*, 849-854.
3. M. Grigalavicius, M. Mastrangelopoulou, K. Berg, D. Arous, M. Ménard, T. Raabe-Henriksen, E. Brondz, S. Siem, A. Görgen, N. F. Edin, E. Malinen, T. A. Theodossiou, *Nat. Commun.* **2019**, *10*.

## Intercepció intramolecular de la posició remota d'intermedis de complexos de vinilcarbè amb plata mitjançant la inserció del enllaç C(sp<sup>3</sup>)-H

Àlex Díaz-Jiménez,<sup>a</sup> Roger Monreal-Corona,<sup>a</sup> Albert Poater,<sup>a</sup> María Álvarez,<sup>b</sup> Elena Borrego,<sup>b</sup> Pedro J. Pérez,<sup>b</sup> Ana Caballero,<sup>b</sup> Anna Roglans,<sup>a</sup> Anna Pla-Quintana<sup>a</sup>

*a, Institut de Química Computacional i Catàlisi and Departament de Química, Universitat de Girona, Girona, Catalunya*

*b, Laboratorio de Catálisis Homogénea, Unidad Asociada al CSIC, CIQSO - Centro de Investigación en Química Sostenible and Departamento de Química, Universidad de Huelva, Huelva, España*  
*roger.monreal@udg.edu*

La funcionalització d'enllaços C-H catalitzada per metalls de transició representa una alternativa als mètodes clàssics per a la construcció d'enllaços C-C i C-heteroàtom. Els carbens metàl·lics són reactius especialment potents per a la inserció en enllaços C-H, tot i que controlar-ne la selectivitat és un dels grans reptes.<sup>1</sup> Els complexos metàl·lics de vinilcarbè constitueixen una subclasse poderosa de carbens metàl·lics, ja que presenten reactivitat electrofílica tant a la posició viníloga com a la carbènica. Això obre noves possibilitats sintètiques, però alhora en complica el control selectiu.<sup>2</sup>

En aquest treball es presenta un estudi mecanístic del primer exemple en què s'ha funcionalitzat de manera selectiva la posició viníloga d'un complex metàl·lic de vinilcarbè mitjançant la inserció d'un enllaç C(sp<sup>3</sup>)-H. Aquesta reacció s'ha dut a terme sota catàlisi amb complexos de plata T<sub>p</sub><sup>x</sup>. El vinilcarbè de plata es genera *in situ* a través d'una metàtesi carbè-alquí (CAM). L'espècie de vinilcarbè de plata donador-donador mostra una inserció selectiva de l'enllaç C(sp<sup>3</sup>)-H en la posició viníloga, permetent la síntesi d'un nou grup de benzoazepines.

El mecanisme de la reacció ha estat investigat mitjançant càlculs extensius de la Teoria del Funcional de la Densitat (DFT), els quals han revelat que la inserció de l'enllaç C-H transcorre en un procés en dos passos, amb el desplaçament de l'hidrogen com a pas determinant de la velocitat. També s'han estudiat els factors que influeixen en la selectivitat entre la reacció viníloga i la carbènica mitjançant la simulació de la reacció amb diferents sistemes catalítics.

Aquest estudi suposa un avenç significatiu en la metodologia sintètica i aporta una comprensió mecanística detallada, obrint la porta a nous desenvolupaments en la química dels carbens.<sup>3</sup>

1. a) W.R. Gutekunst, P. S. Baran, *Chem. Soc. Rev.* **2011**, *40*, 1976–1991; b) L. McMurray, F O'Hara, M. J. Gaunt, *Chem. Soc. Rev.* **2011**, *40*, 1885–1898.

2. B. M. Trost, A.S.K. Hashmi, *J. Am. Chem. Soc.* **1994**, *116*, 2183–2184.

3. À. Díaz-Jiménez, R. Monreal-Corona, A. Poater, M. Álvarez, E. Borrego, P. J. Pérez, A. Caballero, A. Roglans, A. Pla-Quintana, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2023**, *62*, e2022151.

## Estudi de la reacció de desplaçament del gas d'aigua inversa mitjançant camps de força reactius

Gerard Bru,<sup>a</sup> Evgenii Strugovshchikov,<sup>a</sup> Kamila Kaźmierczak,<sup>b</sup> Daniel Curulla-Ferré,<sup>b</sup> Nicolas Montroussier,<sup>b</sup> Jordi J. Carbó,<sup>a</sup> Josep M. Ricard<sup>a</sup>

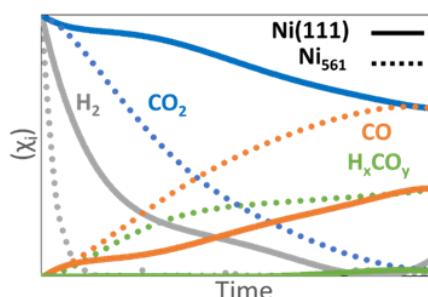
*a, Universitat Rovira i Virgili, Departament de Química Física i Inorgànica, Tarragona, Espanya.*

*b, TotalEnergies OneTech Belgium, Feluy, Bèlgica.*  
*gerard.bru@urv.cat*

La reacció de desplaçament del gas d'aigua inversa (rWGS, *reverse Water-Gas Shift*) és una via prometedora per a la conversió de CO<sub>2</sub> a CO, amb aplicacions en la síntesi de combustibles i productes químics sostenibles. Els catalitzadors basats en níquel poden promoure aquesta reacció, però la seva selectivitat es veu limitada per la formació no desitjada de metà com a producte secundari [1]. Per aprofundir en l'impacte de la morfologia del catalitzador i les condicions del sistema, s'han dut a terme simulacions mitjançant un camp de forces reactiu ReaxFF [2], optimitzat amb tècniques d'aprenentatge automàtic [3] i dades de càlculs DFT com a referència.

Els estudis de dinàmica molecular reactiva han mostrat que l'augment de la temperatura afavoreix tant la conversió de CO<sub>2</sub> com la selectivitat cap a la formació de CO. En canvi, una major concentració d'H<sub>2</sub> condueix a un increment en la producció de compostos hidrogenats. A més, les simulacions amb diferents morfologies de catalitzadors, incloent les superfícies Ni(100) i Ni(111), així com nanopartícules de Ni<sub>561</sub> (2 nm), revelen comportaments diferenciats. La superfície compacta Ni(111) mostra una activitat similar a Ni(100), però amb menys formació de productes hidrogenats. Per la seva banda, la nanopartícula presenta una activitat substancialment més elevada, tot i que amb una selectivitat inferior, degut a l'efecte dels vèrtexs i arestes.

Aquests resultats estan en línia amb les tendències experimentals, destacant la validesa d'aquesta metodologia per estudiar sistemes catalítics complexos i dissenyar materials més eficients per a aplicacions en catàlisi heterogènia.



1. K-J. Lee, Y. Ye, H. Su, B. S. Mun, E. J. Crumlin, *ACS Catal.* **2023**, *13*, 9041–9050.
2. P. Senftle, S. Hong, S. Md. M. Islam, S. B. Kylasa, Y. Zheng, Y. K. Shin, C. Junkermeier, R. Engel-Herbert, M. J. Janik, J. M. Aktulga, T. Verstraelen, A. Grama, A. C. T. van Duin, *npj Comput. Mat.* **2016**, *13*, 15011–15025.
3. A. Salom-Català, E. Strugovshchikov, K. Kaźmierczak, D. Curulla-Ferré, J.M. Ricart, J. J. Carbó, *J. Phys. Chem. C.* **2024**, *128*, 2844–2855.

## Diagnostic multireferencial basat en enegies d'orbitals Kohn-Sham.

Markel Ylla,<sup>a,c</sup> Eloy Ramos-Cordoba,<sup>b</sup> Eduard Matito,<sup>c,d</sup>

*a, Euskal Herriko Unibertsitatea, Department of Advanced Polymers and Materials: Physics, Chemistry and Tecnology, Donostia, Spain.*

*b, Institute for Advanced Chemistry of Catalonia (IQAC), CSIC, Barcelona, Spain*

*c, Donostia International Physics Center, Donostia, Spain*

*d, IKERBASQUE, Basque Foundation for Science, Bilbao, Spain  
markelgtx@gmail.com*

Els mètodes d'estructura electrònica es classifiquen segons la seva capacitat per tenir en compte els efectes de correlació electrònica dinàmica (mètodes *single reference* o SR) i no dinàmica (mètodes de *multireference* o MR). Representar amb precisió els sistemes moleculars requereix triar un mètode adequat. En concret, quan es treballa amb sistemes amb una correlació predominantment no dinàmica, utilitzar mètodes SR pot generar errors importants en la descripció de les propietats de la molècula. En el camp de la química computacional, generar i tractar grans conjunts de dades moleculars s'ha convertit en una pràctica habitual, fet que ha incrementat la demanda de mètodes assequibles per identificar molècules on predomina aquest tipus de correlació (coneguts com a diagnòstics multireferencials). Malauradament, no hi ha moltes eines disponibles per a fer una avaluació ràpida del caràcter multireferencial d'una molècula.

Recentment, hem realitzat un anàlisi dels diagnòstics MR basats en la teoria de la funció d'ona, identificant una mètrica representativa de correlació no dinàmica que es pot calcular a partir de les ocupacions d'orbitals naturals. En aquest treball, presentem l'extensió del diagnòstic MR a mètodes de la teoria del funcional de la densitat (DFT), que són computacionalment més econòmics que els mètodes de funció d'ona. Hem utilitzat un model d'intel·ligència artificial per establir una relació entre les energies dels orbitals de Kohn-Sham i el caràcter MR de la molècula, aconseguint una excel·lent concordança amb les prediccions proporcionades pels diagnòstics basats en càlculs de funció d'ona.

Aquest treball, per tant, presenta un mètode econòmic que només requereix un càlcul DFT per determinar el caràcter MR d'un sistema molecular. Com a tal, aquest mètode és una solució ràpida i precisa per a la detecció de correlació no dinàmica en grans de base de dades moleculars, que s'empreen actualment per entrenar mètodes basats en l'aprenentatge estadístic.

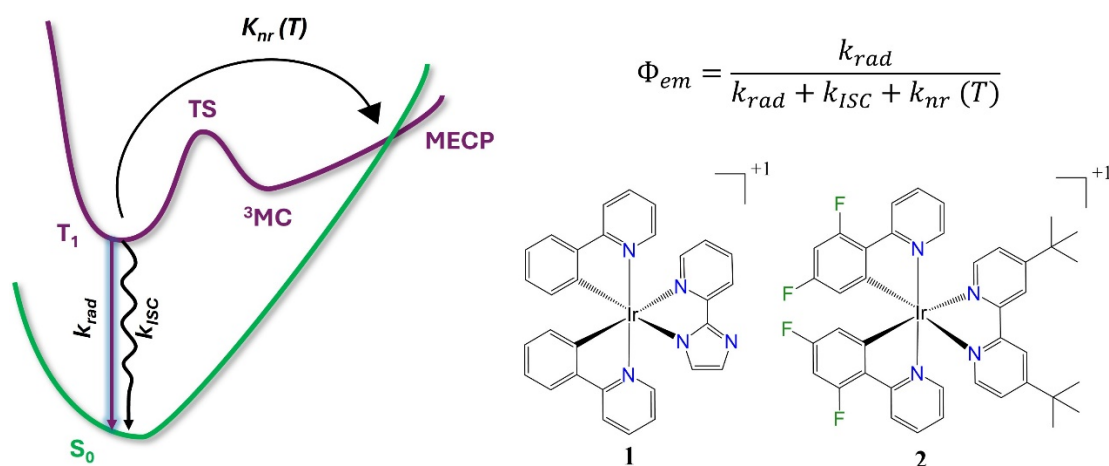
1. X. Xu, L. Soriano-Agueda, X. López, E. Ramos-Córdoba, E. Matito, *J. Chem. Theory Comput.* **2024**, *20*(2), 721–727.
2. E. Ramos-Cordoba, P. Salvador, E. Matito, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2016**, *18*, 24015–24023.
3. E. Ramos-Cordoba, E. Matito, *J. Chem. Theory Comput.* **2017**, *13*(6), 2705–2711.

## Càlcul del rendiment quàntic d'emissió en complexos de Ir(III)

Angelo Giussani, Ivan Soriano-Díaz, Enrique Ortí

Institute for Molecular Science (ICMol), Universitat de València, Catedrático José Beltrán 2, 46980 Paterna, España. Email: [enrique.orti@uv.es](mailto:enrique.orti@uv.es), [angelo.giussani@uv.es](mailto:angelo.giussani@uv.es)

Gràcies a les seues peculiars propietats fotofísiques, *ionic transition metal complexes* (iTCMs) basats en Ir(III) amb fórmula general  $[\text{Ir}(\text{C}^{\wedge}\text{N})_2\text{N}^{\wedge}\text{N}]^+$  s'utilitzen en importants aplicacions tecnològiques, com per exemple dispositius electroluminescents o com a substàncies fotosensibilitzants en teràpia fotodinàmica [1]. Per a obtenir iTCMs que s'adapten cada vegada millor als seus usos tecnològics, és fonamental pronosticar les propietats fotofísiques de nous possibles complexos, i en particular els seus rendiments quàntics d'emissió  $\Phi_{em}$ . En la present contribució, hem estudiat dos complexos de Ir(III):  $[\text{Ir}(\text{ppy})_2(\text{pyim})]^+$  i  $[\text{Ir}(\text{diFppy})_2(\text{dtbbpy})]^+$  (imatge 1). El principal objectiu d'aquest estudi és avaluar la capacitat del model teòric basat en la caracterització de les superfícies d'energia potencial (SEPs) dels estats excitats triplets amb càlculs DFT i TDDFT, per a reproduir els seus valors experimentals de  $\Phi_{em}$ . D'aquesta manera pretenem jutjar la fiabilitat de la metodologia per a proposar nous complexos. Primer hem analitzat l'influència del funcional DFT comparant els resultats obtinguts amb B3LYP y PBE0. Malgrat que el dos funcionals proporcionen una visió pareguda de la fotofísica dels complexos, B3LYP subestima de forma sistemàtica la barrera energètica que separa els triplets emissors dels triplets no-emissors, subestimant conseqüentment el  $\Phi_{em}$  [2]. Seguidament, hem estudiat la importància de incloure tots els possibles camins radiatius i no-radiatius i de la caracterització de la SEP que separa el estats emissors dels no-emissors [3].



1. R. Costa, E. Ortí, H. Bolink, F. Monti, G. Accorsi, N. Armaroli, *Angew. Chem., Int. Ed.* **2012**, *51*, 8178–8211
2. I. Soriano-Díaz, E. Ortí, A. Giussani, *Inorg. Chem.* **2024**, *63*, 16600–16604
3. I. Soriano-Díaz, I. Dergachev, S. Varganov, E. Ortí, A. Giussani, *Submitted*

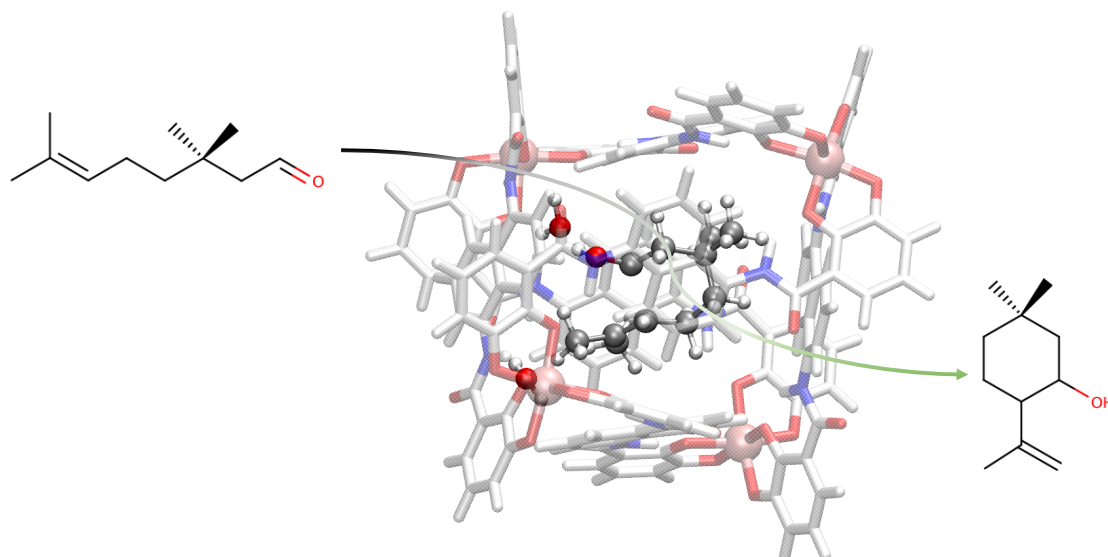
## Modelització de la reacció de Prins en metal·locaixa $M_4L_6$

Gantulga Norjmaa, Iker Zapirain-Gysling, Jean-Didier Maréchal,  
Gregori Ujaque

Universitat Autònoma de Barcelona, Departament de Química, 08193  
Cerdanyola del Valles, Spain.  
[gantulga.norjmaa@uab.cat](mailto:gantulga.norjmaa@uab.cat)

Les caixes metall-orgànica representen un dels desenvolupaments més interessants en el disseny d'amfitrions supramoleculares. Inicialment es van inspirar en processos biològics i s'han desenvolupat nous microambients sintètics basats en lligands orgànics i àtoms metàl·lics durant les últimes dècades.[1] Aquests sistemes són en principi més simples que els enzims, però poden actuar com a catalitzadors de transformacions químiques. No obstant això, s'han informat pocs estudis teòrics sobre l'anàlisi dels orígens de la catàlisi aconseguida per les metal·locaixes.[2]

Aquí, presentarem el nostre estudi computacional sobre l'origen de la catàlisi supramolecular basada en una metal·locaixa  $Ga_4L_6$  mitjançant mètodes teòrics. Es presentarà una combinació de diverses tècniques computacionals, que van des de la mecànica quàntica fins als camps de força per simular els processos químics. L'anàlisi de la reacció en solució i la reacció en el metal·locaixa aportaran informació sobre l'origen de la catàlisi.



1. Vegeu per exemple: (a) C. J. Brown, F. D. Toste, R. G. Bergman, K. N. Raymond, *Chem. Rev.* **2015**, *115*, 3012-3035. (b) M. Kawano, M. Fujita, *Coord. Chem. Rev.* **2007**, *251*, 2592-2605.
2. Vegeu per exemple: (a) V. V. Welborn, T. Head-Gordon, *J. Phys. Chem. Lett.*, **2018**, *9*, 3814-3818. (b) G. Norjmaa, J-D. Maréchal, G. Ujaque, *J. Am. Chem. Soc.* **2019**, *141*, 13114-13123. (c) G. Norjmaa, F. Himo, J-D. Maréchal, G. Ujaque, *Chem. Eur. J.* **2022**, *28*, e202201792. (d) I. Zapirain-Gysling, G. Norjmaa, J-D. Maréchal, G. Ujaque, *ACS Catal.* **2024**, acceptat.

## Desxifrant el Potencial de L'EXAFS: Aprenentatge Automàtic per a Dades Espectroscòpiques

Javier Heras-Domingo,<sup>a</sup> Andrea Ruiz-Ferrando<sup>a</sup>, Nuria López<sup>a</sup>

*a, Institut Català d'Investigació Química (ICIQ), Tarragona, Espanya.*

La sostenibilitat en catàlisi requereix un control precís dels materials, com l'ús mínim de matèries primeres crítiques [1]. Els catalitzadors d'àtom aïllat (SACs) són un avenç en aquest àmbit, oferint rendiments excepcionals en reaccions industrials gràcies a les seves propietats úniques derivades de l'especiació del metall (càrrega i coordinació). Aquests catalitzadors, sovint suportats en matrius de carboni, es caracteritzen mitjançant tècniques avançades com la microscòpia [2,3] i l'espectroscòpia d'absorció de raigs X (EXAFS), però aquestes eines encara depenen de protocols cars i llargs.

En catàlisi heterogènia, especialment amb SACs, no hi ha una manera directa de dissenyar llocs actius, la qual cosa limita el desenvolupament de nous materials. Això ha generat una demanda creixent de tècniques de caracterització basades en llum de sincrotró i de solucions més accessibles com hiXAS i easyXAS. En aquest context, l'aplicació d'intel·ligència artificial (IA) [4] pot transformar el camp cap a una anàlisi més eficient i quantitativa.

Aquest treball presenta eines intel·ligents i automatitzades per analitzar dades EXAFS i optimitzar el disseny racional de SACs. Utilitzant fluxos de treball automatitzats amb programari de codi obert com Atomate[5], Fireworks[6] i Pymatgen[7], s'han generat dades teòriques d'alta qualitat complementades amb dades experimentals obtingudes en col·laboració amb la línia de llum SuperXAS del PSI. Amb aquestes dades, s'ha entrenat un model basat en xarxes neuronals (GNN) capaç de predir espectres EXAFS i millorar-los amb dades experimentals per capturar efectes reals, com els desordres tèrmics.

La metodologia es va aplicar a la síntesi d'un catalitzador de platí d'àtom aïllat (Pt-SAC) suportat en PTI (polímer de triazina imida), analitzant estructures plausibles en cada etapa del procés sintètic: impregnació, rentat, recuit a baixa i alta temperatura. Aquesta estratègia permet identificar les estructures més probables i seguir l'activació del lloc actiu del catalitzador.

Aquest treball subratlla la importància de millorar les tècniques de caracterització per dissenyar catalitzadors amb propietats ajustades. L'ús d'IA ha potenciat l'anàlisi EXAFS, passant d'una perspectiva qualitativa a quantitativa, i ha permès una caracterització més detallada de catalitzadors com el Pt-PTI. Aquesta metodologia representa un avenç cap al desenvolupament de nous materials catalítics amb propietats millorades.

1. Qiao, B., Wang, A., Yang, X., et. al. *Nat. Chem.*, **2011**, 3(8), 634-641
2. Mitchell, S., Parés, F., Faust Akl, D., Collins, et. al, *JACS*, **2022**, 144(18), 8018-8029.
3. Rossi, K., Ruiz-Ferrando, A., Heras-Domingo, J., et. al., *Adv. Mat.*, **2023**, 2307991.
4. Wang, H., Fu, T., Du, Y. et. al. *Nature*, **2023**, 620, 47-60.
5. Mathew, K., Montoya, J. H., et. al., *Comput. Mater. Sci.*, **2017**, 139, 140-152.
6. Jain, A., Ong, S. P., et. al., *Concurrency and Computation*, **2015**, 27(17), 5037-5059.
7. Horton, M., *Nature Reviews Physics*, **2023**, 5(2), 76-76.



## Noves eines d'anàlisi de la funció d'ona: els orbitals efectius de fragment.

Gerard Comas-Vilà,<sup>a</sup> Pedro Salvador<sup>a</sup>

<sup>a</sup>, Universitat de Girona, Departament de Química, Institut de Química Computacional i Catàlisi, Girona 17003, Espanya.

Els conceptes químics clàssics com l'enllaç químic, l'estat d'oxidació o l'aromaticitat sovint no tenen una definició clara i inequívoca. Malgrat això, aquests conceptes heurístics encara son extremadament útils per descriure, classificar i fer prediccions dels processos químics.

Al nostre grup de recerca abordem el repte de salvar la bretxa entre el llenguatge de la química utilitzat pels químics i els resultats derivats dels càlculs d'estructura electrònica.

En aquesta comunicació mostrarem com els anomenats orbitals efectius de fragment o *effective fragment orbitals* (EFOs)[1] i les seves ocupacions poden ser una eina molt valuosa per l'anàlisi de la funció d'ona. Els EFOs són una generalització dels orbitals atòmics efectius de Mayer[2] a fragments moleculars, i es poden assimilar als orbitals naturals dels àtoms/fragments dins la molècula. Una aplicació directa dels EFOs i les seves ocupacions és el mètode EOS per a l'assignació d'estats d'oxidació en sistemes moleculars. El mètode s'ha aplicat recentment per discernir diferents models de l'oxygen-evolving complex (OEC).[3] Una altra aplicació és la quantificació de les capacitats donor-acceptor de lligands en complexes, sense necessitat de recórrer a referències externes.[4] També es mostrarà que els EFOs poden ser utilitzats per a la racionalització dels efectes inductius i mesomèric en benzè substituïts en sintonia amb els paràmeters de Hammett.[5] Finalment, també es mostrarà com les ocupacions d'alguns EFOs clau permeten una predicció acurada de la temperatura de transició en complexes que presenten spin-crossover.

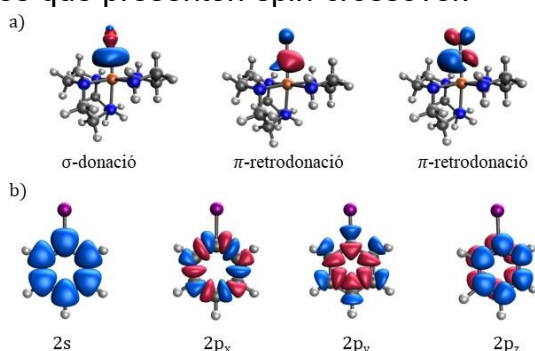


Figura 1: a) EFOs del lligand CO en el complex  $[\text{Fe}(\text{en})(\text{TACN})\text{CO}]^{2+}$  i b) EFOs dels àtoms de carboni en el benzè monosubstituït per quantificar els efectes inductiu i mesomèric del substituïent.

1. E. Ramos-Cordoba, et al. *J. Chem. Theory Comput.* **2015**, *11*, 1501–1508.
2. I. Mayer, *J. Phys. Chem.* **1996**, *100*, 6249–6257.
3. M. Drosou, G. Comas-Vilà, F. Neese, P. Salvador, D. A. Pantazis, *J. Am. Chem. Soc.* **2023**, *145*, 10604–10621.
4. G. Comas-Vilà, P. Salvador, *ChemPhysChem* **2024**, *25*, e202400582.
5. G. Comas-Vilà, P. Salvador, A. Pla, (*submitted*).

## Estudi computacional del citocrom P450 CYP199A4

Laura Martínez-Castro,<sup>a</sup> Stephen G. Bell<sup>b</sup>, Jean-Didier Maréchal<sup>a</sup>

*a, Insilichem, Universitat Autònoma de Barcelona, Departament de Química, Barcelona, Espanya.*

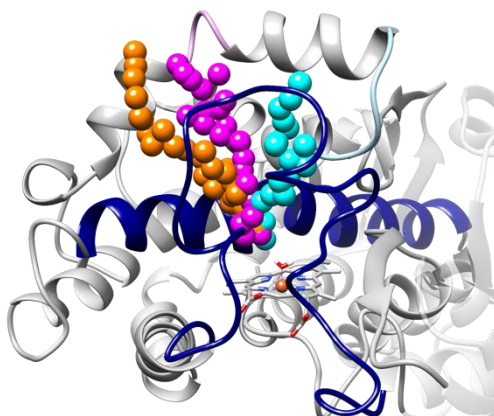
*b, University of Adelaide, Faculty of Sciences, Engineering and Technology, Adelaide, Australia.*

*laura.martinez.castro@uab.cat*

Els citocroms P450 són una superfamília d'hemoenzims implicats en el metabolisme de xenobiòtics a tots els regnes de la vida. Han estat àmpliament estudiats per la seva participació en el metabolisme de fàrmacs, però també com a punt de partida pel disseny d'enzims aprofitant així la seva activitat catalítica de monooxigenasa. [1]

En col·laboració amb el grup del Dr. S. Bell (Adelaide, Aus), ens hem centrat en el citocrom P450 CYP199A4, del bacteri *Rhodopseudomonas palustris*. Aquesta espècie és un bacteri molt versàtil amb citocroms capaços de catalitzar diversos tipus de reaccions per un espectre ampli de derivats de l'àcid benzoic. [2]

Amb l'objectiu de complementar informació experimental recentment obtinguda, incloent estructures cristal·logràfiques, hem aplicat mètodes de dinàmica molecular accelerada per identificar: 1. l'origen de l'especificitat del CYP199A4, 2. els camins d'entrada i sortida dels substrats i productes i 3. la rellevància de les molècules d'aigua en el mecanisme de reconeixement. S'espera que els resultats d'aquestes modelitzacions ajudin a dur a terme el disseny de noves variants funcionals amb substrats no naturals d'aquest enzim.



1. H.M. Girvan, A.W. Munro, *Curr. Opin. Chem. Biol.* **2016**, 31, 136-145.
2. S.G. Bell, R. Zhou, W. Yang, A.B. Tan, A.S. Gentleman, L.L. Wong, W. Zhou, *Chem. Eur. J.* **2012**, 18, 16677-16688.

## Predicció computacional de mobilitats de buits en materials orgànics semiconductors

Manuel Pérez-Escribano,<sup>a</sup> Alberto Fernández-Alarcón,<sup>a</sup> Enrique Ortí,<sup>a</sup> Juan Aragó,<sup>a</sup> Jesús Cerdá,<sup>b</sup> Joaquín Calbo<sup>a</sup>

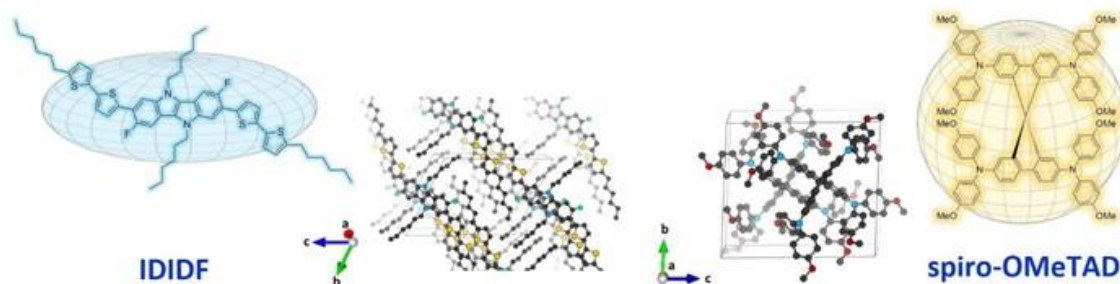
*a, Universitat de València, Institut de Ciència Molecular, Paterna, Espanya.*

*b, Université de Mons, Institut de Recerca de Materials, Mons, Bèlgica.*

*adreça electrònica: manuel.perez-escribano@uv.es*

Els materials transportadors de buits (hole-transporting materials, HTMs) són components essencials dels dispositius fotovoltaics basats en perovskita per a l'extracció eficient de càrrega i el seu transport.[1] Tot i que s'ha prestat molta atenció a investigar la relació entre l'estructura química i les propietats del transport de càrrega en el disseny de HTMs moleculars, encara falta un procediment sistemàtic per estudiar l'impacte de la disposició molecular, la morfologia del material i les fluctuacions dinàmiques del HTM en el rendiment final del dispositiu.

En aquesta contribució, s'utilitza un protocol computacional i teòric per a revelar l'efecte de les interaccions no covalents en els acoblaments electrònics, necessaris per al transport eficient de buits, i com tots dos estan influenciats per la forma molecular, les fluctuacions estructurals dinàmiques i la configuració de la fase cristal·lina. Per a això, s'estudien i comparen dos sistemes: un petit i pla indolo-indol, conegut com a IDIDF, i spiro-OMeTAD, àmpliament utilitzat en dispositius, que mostra una forma esfèrica.[2]



1. L. Calió, S. Kazim, M. Grätzel, S. Ahmad. *Angew. Chem. Int. Ed.* **2016**, 55,14522-14545.

2. M. Pérez-Escribano, A. Fernández-Alarcón, E. Ortí, J. Aragó, J. Cerdá, J. Calbo. *Faraday Discuss.*, **2024**, 250, 202-219.

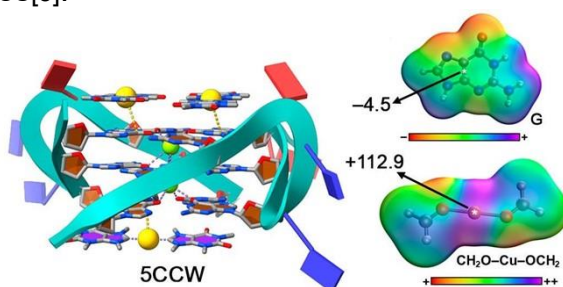
## L'enllaç regium i la seva rellevància en el context de la química inorgànica i bioinorgànica des de una perspectiva teòrica.

**Sergi Burguera<sup>a</sup>, Antonio Bauzá<sup>a</sup> and Antonio Frontera<sup>a</sup>**

*a, Departament de Química, Universitat de les Illes Balears, Ctra. de Valldemossa km 7.5, 07122 Palma*

L'enllaç regium és el terme que s'ha proposat per identificar les interaccions no covalents que impliquen àtoms del grup XI de la taula periòdica. Aquestes interaccions de naturalesa feble s'han trobat en una sèrie de sistemes biològics[1],[2] i la seva rellevància i aplicacions s'han estudiat teòricament amb més profunditat utilitzant eines de química computacional d'última generació, com ara l'estudi combinat *Atoms in Molecules/Non Covalent Interaction Plot* (AIM/NCIplot), el mapeig del Potencial Electroestàtic Molecular (MEP) i l'Anàlisi per esquemes de Descomposició Energètica (EDA).

Per entendre millor el potencial de l'enllaç regium i les seves possibles aplicacions i implicacions en els camps de l'enginyeria del cristall, la química bioinorgànica i la química inorgànica, hem estudiat models que poden il·lustrar la interacció regium prenent directament estructures de bases de dades cristal·logràfiques com el *Protein Data Bank* (PDB); o dissenyant models arbitraris més senzills per ampliar encara més el concepte de la interacció regium. En els darrers anys, hem fet contribucions per ampliar el nostre coneixement d'aquesta interacció que inclouen l'estudi de la seva interacció en el context biològic de les nucleobases[3], hem explorat la fortalesa de la interacció no covalent en funció de la mida de nanopartícules modeliques dissenyades[4] i hem proposat algunes equacions per identificar l'energia de la interacció entre àtoms de plata i àtoms d'or, proporcionant noves idees sobre les interaccions argentòfiles i auròfiles[5].



1. M. N. Piña, A. Frontera, A. Bauzá, *J. Phys. Chem. Lett.* **2020**, *11*, 8259–8263
2. M.N. Piña, T. J. Mooibroek, A. Frontera, A. Bauzá, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2022**, *24*, 24983–24991
3. S. Burguera, A. Frontera, A. Bauzá, *Inorg. Chem.* **2023**, *62*, 6740–6750
4. S. Burguera, M. N. Piña, A. Bauzá, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **2024**, *26*, 20522-20529
5. S. Burguera, A. Bauzá, A. Frontera, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **2024**, *26*, 16550-16560

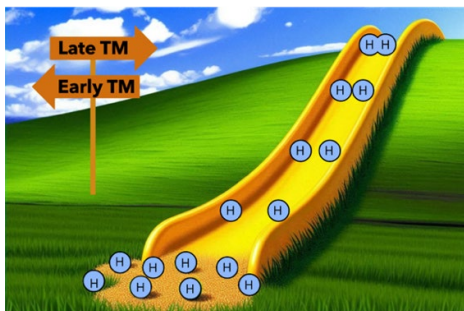
# Presentacions Flaix

## Interacció de l'Hidrogen Atòmic amb Superfícies de Metalls de Transició: Un Estudi Computacional de Gran Abast

Miquel Allés,<sup>a</sup> Ling Meng,<sup>a</sup> Ismael Beltrán,<sup>a</sup> Ferran Fernández,<sup>a</sup> Francesc Viñes<sup>a</sup>

*a, Universitat de Barcelona, Departament de Ciència de Materials i Química Física & Institut de Química Teòrica i Computacional (IQTUB), Barcelona, Spain.  
 miquel.alles@ub.edu*

Els àtoms d'hidrogen estan implicats en moltes reaccions essencials per la societat moderna, catalitzades per superfícies de metalls de transició (MT), com el procés Haber-Bosch,<sup>[1]</sup> o la reacció inversa del desplaçament de gasos d'aigua. Qualsevol millora d'aquests catalitzadors requereix un coneixement atòmic de la interacció metall↔hidrogen, només assolible mitjançant càlculs de primers principis en models realistes i adequats. L'estudi utilitza la teoria del funcional de la densitat per avaluar la interacció de l'hidrogen en baix recobriment sobre les superfícies més estables dels MT amb estructura *bcc* (*body-centered cubic*), *fcc* (*face-centered cubic*) i *hcp* (*hexagonal close-packed*). Aquestes superfícies són les (001), (011) i (111) pels MT *bcc* i *fcc*, i les (0001), (10 $\bar{1}$ 0) i (11 $\bar{2}$ 0) pels *hcp*, donant un total de 27 MT i 81 superfícies diferents. Els resultats validen, i alhora amplien, les avaluacions prèvies, revelant que les superfícies dels MT es poden dividir en dos grups principals: un de majoritari, on l'H<sub>2</sub> es veuria termodinàmicament impulsat a dissociar-se en àtoms d'H situats a alçades d'entre ~0,5 i ~1,0 Å, i un altre per a MT tardans, generalment amb una configuració electrònica *d*<sup>10</sup>, on es preferiria l'adsorció d'H<sub>2</sub> sense dissociació. No s'han trobat tendències en les energies d'adsorció d'H al llarg dels grups, però sí al llarg de les sèries *d*,<sup>[2]</sup> amb el millor ajust lineal obtingut pel descriptor del centre de la banda *d*, especialment adequat per les superfícies compactes dels MT *fcc* i *hcp*. Les energies d'adsorció lliure de Gibbs mostren un gràfic teòric en forma de volcà on els MT *fcc* són els més adequats, però amb el pic de rendiment del Pt desplaçat a causa de la inclusió de forces dispersives al mètode. No obstant això, el gràfic de volcà respecte al logaritme de la densitat de corrent intercanviada a partir dades policristal·lines experimentals està lluny de ser vàlid per fer una avaluació quantitativa, tot i que és útil per fer un cribratge qualitatiu, i per confirmar les tendències observades computacionalment.



[1] J. Humphreys, R. Lan, S. Tao, *Adv. Energy Sustainability Res.* **2020**, *2*, 2000043.

[2] L. Vega, B. Martínez, F. Viñes, F. Illas, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2018**, *18*, 20548-20554.

## Rotant entre fases topològiques en polímers 1D conjugats

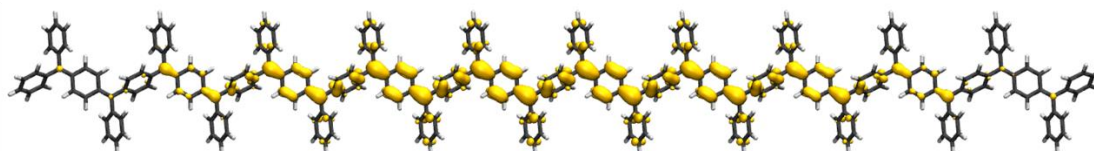
Isaac Alcón<sup>a</sup>

*a, Departament de Ciència de Materials i Química Física & Institut de Química Teòrica i Computacional (IQTC), Universitat de Barcelona, c/ Martí i Franquès 1-11, 08028 Barcelona, Spain.*

[ialcon@ub.edu](mailto:ialcon@ub.edu)

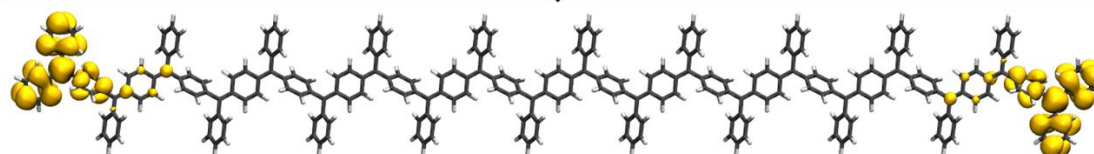
Des de fa pocs anys és possible dissenyar, amb precisió atòmica, estats electrònics topològics en materials nano-estructurats de carboni tals com les nano-tires de grafé<sup>[1]</sup> (*graphene nanoribbons*, del anglès) o els polímers conjugats 1D<sup>[2]</sup> (*1D conjugated polymers*, 1DCPs, del anglès). Així, ha estat possible la manipulació de fases topològiques trivials o no-trivials en aquests nano-materials mitjançant hidrogenació<sup>[3]</sup> o camps elèctrics.<sup>[4]</sup> Paral·lelament, s'ha demostrat que el gir, o rotació, d'anells fenil permet induir externament l'aparellament d'electrons en polímers conjugats 2D.<sup>[5]</sup> Tot i així, aquest mecanisme de rotació molecular encara no s'ha aplicat per manipular fases topològiques. Mitjançant càlculs basats en la teoria del funcional de la densitat, nosaltres em demostrat que, efectivament, el gir d'anells fenil pot ser utilitzat per transitar entre la fase topològica trivial i la no-trivial en 1DCPs basats en molècules tipus triarilmetil (TAM). Aquesta transició quàntica es dona a través d'una fase multi-radical antiferromagnètica, normalment associada als anomenats aïllants de Mott. Això ens permet caracteritzar els TAM 1DCPs com a nano-materials topològics exòtics.<sup>[6]</sup>

### Fase Trivial



↑↑  
**Rotació**  
↓↓

### Fase No-trivial



- [1] Gröning, O. *et al. Nature* 560, (2018) 209–213
- [2] Cirera, B. *et al. Nat. Nanotechnol.* 15, (2020) 437–443
- [3] González-Herrero, H. *et al. Adv. Mater.* 33, (2021) 2104495
- [4] Zhao, F., Cao, T. & Louie, S. G. *Phys. Rev. Lett.* 127, (2021) 166401
- [5] Alcón, I. *et al. Nat. Commun.* 12, (2021) 1705
- [6] Alcón, I. *et al. Adv. Funct. Mater.* (2024) 2409174

## Modelant l'Electrocatalisi de l'Aigua: Enfocament Microcinètic Híbrid integrant Dades de LSV i Mecanismes de DFT

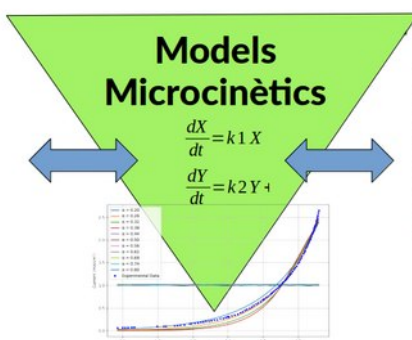
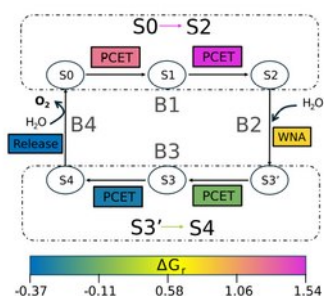
Mireia Segado-Centellas,<sup>a</sup> Maria Besora<sup>a</sup>

<sup>a</sup>, Universitat Rovira i Virgili, Departament de Química Física i Inorgànica, Tarragona.

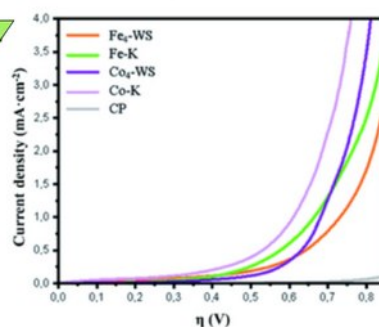
Mireia.segado@urv.cat

El mecanisme d'oxidació de l'aigua és un procés complex de múltiples passos que implica tant passos químics com electroquímics. Identificar els passos clau que influeixen críticament en la corrent i el sobrepotencial és essencial. Actualment, els rols específics dels passos de reacció individuals i el seu efecte en el sobrepotencial i la corrent són poc clars. Presentem un nou enfocament microcinètic híbrid mitjançant la integració de dades experimentals de voltamperometria d'escombratge lineal (LSV), amb mecanismes de la teoria de funcional de densitat (DFT). Aquest mètode permet el desenvolupament i la parametrització de models microcinètics per simular la relació corrent-potencial. Els nostres resultats mostren que el sobrepotencial no només es veu influït per passos electroquímics, sinó també per passos químics. A més, connectem les propietats cinètiques de cada pas amb el comportament electroquímic mesurable, posicionant el coeficient de transferència de càrrega com un enllaç entre el potencial de l'elèctrode i la corrent. Aquests resultats demostren els principis electrocinètics, establint un pont entre els enfocaments teòrics i experimentals per proporcionar una visió més profunda dels factors claus que governen els mecanismes electrocatalítics multi-passos.

### Mecanisme Reacció DFT



### Dades experimentals LSV



1. Maria Besora, Feliu Maseras, WIREs Comput. Mol. Sci. **2018**, Vol 8 1759-0876



## ANÀLISI COMPUTACIONAL DE LA PROMISCUÏTAT DE L-ASPARAGINASES

Jonnely Luizaga,<sup>a</sup> Cristina Duran,<sup>a</sup> Mona Wieland,<sup>b</sup> Andrea Hupfeld,<sup>b</sup> Sílvia Osuna<sup>a,c</sup>

*a, Universitat de Girona (UdG), Departament de Química i Institut de Química Computacional i Catàlisi (IQCC), grup TCBioSys, Girona, Espanya.*

*b, University of Regensburg, Institute of Biophysics and Physical Biochemistry and Regensburg Center for Biochemistry, Regensburg, Germany.*

*c, ICREA, Barcelona, Espanya  
jonnely.luizaga@udg.edu*

La família de L-asparaginases, encarregades de la hidròlisi de L-asparagina a L-àcid aspàrtic, formen part d'un protocol pel tractament de la leucèmia limfoblàstica aguda (LLA) en infants, des de la seva aprovació l'any 1981 [1]. A diferència del teixit normal, aquest tipus de càncer impedeix la síntesi de L-asparagina a les cèl·lules canceroses, resultant en la seva completa dependència al subministrament extracel·lular de la L-asparagina [2]. Explotant aquest tret característic, la L-asparaginasa subministrada com a part del protocol pel tractament de la LLA, actua ràpidament exhaurint l'existència de L-asparagina en sang, el qual afecta específicament a les cèl·lules canceroses deixant-les famèliques i resultant en la seva apoptosi [1], mentre que les cèl·lules no cancerígenes continuen amb la seva activitat normal. L'inconvenient més gran que presenta l'aplicació de L-Asparaginasa com a agent anticancerígen és la seva capacitat de dur a terme una funció secundària com a L-glutaminasa. Mentre que aquesta promiscuïtat comporta una major eficàcia del tractament [3], els baixos nivells de glutamina en sang resultants poden provocar greus efectes secundaris en els pacients [1].

En els últims anys, s'han investigat extensivament les propietats estructurals i bioquímiques de les L-asparaginases, proporcionant així una descripció estructural molt detallada en diferents organismes, i aclarint el mecanisme de la seva activitat [1]. Amb l'objectiu de millorar les seves propietats clíniques i beneficiant-nos de la disponibilitat de la informació estructural dels enzims, en aquest estudi s'utilitza la mecànica quàntica (MQ) i la dinàmica molecular (DM) [4] per discernir entre les diferències en l'especificitat del substrat i les activitats que presenten alguns organismes, amb l'objectiu a llarg plaç de dissenyar noves variants amb menys activitat secundària front a la L-glutamina.

1. J. Lubkowski, A. Wlodawer, *FEBS J.*, **2021**, 288 (14), 4183–4209.
2. H. A. Nguyen, D. L. Durden, A. Lavie, *Sci. Rep.*, **2017**, 7 (1), 41643.
3. J. Blachier, A. Cleret, N. Guerin, C. Gil, J.-M. Fanjat, F. Tavernier, L. Vidault, F. Gallix, N. Rama, R. Rossignol, D. Piedrahita, A. Andrivon, M. Châlons-Cottavoz, K. Aguera, F. Gay, F. Horand, B. Laperrousaz, *Exp. Cell Res.*, **2023**, 426 (2), 113568.
4. S. Osuna, *Rev. Comput. Mol. Sci.* **2021**, 11 (3), e1502.

## Estudi computacional de sistemes de transició d'espí units a nanoanells de carboni

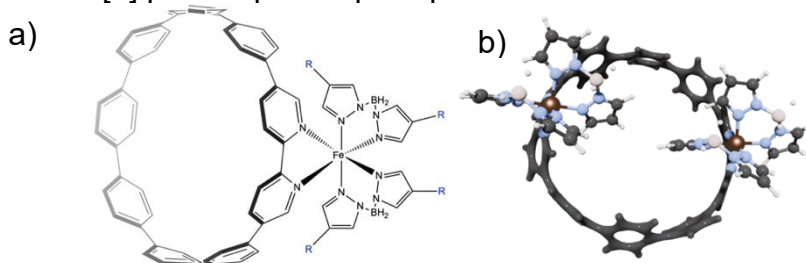
Arnau Garcia,<sup>a,b</sup> Jordi Cirera<sup>a,b</sup>

<sup>[a]</sup> Universitat de Barcelona, Departament de Química Inorgànica i Orgànica, secció de Química Inorgànica, Barcelona, Espanya.

<sup>[b]</sup> Institut de Química Teòrica i Computacional (IQTC)  
 arnau.garcia@ub.edu

Els sistemes de transició d'espí són complexos de metalls de transició en els quals el metall presenta estats electrònics amb diferent espí però energia electrònica similar, permetent a la molècula accedir a ambdues configuracions gràcies a un estímul extern, com la temperatura o la pressió. Un paràmetre clau per caracteritzar aquests sistemes és la temperatura de transició ( $T_{1/2}$ ), definida com la temperatura a la qual ambdós estats d'espí tenen la mateixa població.[1] Aquestes molècules són unes candidates perfectes per actuar com a interruptors moleculars, podent ser usades en aplicacions com sistemes d'emmagatzematge de memòria o sistemes d'espíntrònica a nivell de nanoescala.

Les nanoestructures de carboni han suscitat força interès en els últims anys degut a les seves notables propietats conductores. En aquest estudi s'ha utilitzat un sistema particular de nanoestructura de carboni, els nanoanells, ja que al poder-se funcionalitzar, permeten el seu us com a lligands.[2] L'objectiu d'aquest treball ha estat estudiar sistemes amb transició d'espí de Fe(II) inserits en nanoanells de carboni, i les seves implicacions en la  $T_{1/2}$ . A partir del sistema  $[\text{Fe}(\text{bipy}[n]\text{CPP})\{\text{H}_2\text{B}(\text{pyz})_2\}_2]$  ( $n=7-12$ ), figura 1 (a), s'ha estudiat la dependència tant de la mida de l'anell com de diferents modificacions R (R=H, NO<sub>2</sub>, CH<sub>3</sub>, Cl, NH<sub>2</sub>, CF<sub>3</sub>) en l'altre lligand sobre la  $T_{1/2}$ . Els sistemes di- i trinuclears  $[\text{Fe}_2(\text{dibipy}[n]\text{CPP})\{\text{H}_2\text{B}(\text{pyz})_2\}_4]$  ( $n=8, 10, 12, 14$ ) i  $[\text{Fe}_3(\text{tribipy}[n]\text{CPP})\{\text{H}_2\text{B}(\text{pyz})_2\}_6]$  ( $n=9, 12, 15$ ), figura 1 (b), i els efectes que introdueix l'addició d'un segon i tercer centre metàl·lic en els diferents anells respecte la  $T_{1/2}$  també han estat estudiats. Aquest anàlisi s'ha dut a terme mitjançant un codi de python que s'ha desenvolupat per tal de solucionar el model de Slichter i Drickamer per espècies di- i trinuclears[3] podent predir quin tipus de transició el sistema experimentarà.



**Figura 1.** a)  $[\text{Fe}(\text{bipy}[9]\text{CPP})\{\text{H}_2\text{B}(\text{pyz})_2\}_2]$  b)  $[\text{Fe}_2(\text{dibipy}[10]\text{CPP})\{\text{H}_2\text{B}(\text{pyz})_2\}_4]$

1. J. Cirera, F. Paesani, *Inorg. Chem. Int. Ed.* **2012**, *51*, 8194–8201
2. M. J. Heras Ojea, J. M. Van Randen, S. Louie, R. Collins, D. Pividori, J. Cirera, K. Meyer, R. Jasti, R. A. Layfield, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2021**, *60*, 3515–3518
3. J. A. Real, H. Bolvin, A. Bousseksou, A. Dworkin, O. Kahn, F. Varret, J. Zarembowitch, *J. Am. Chem. Soc.* **1992**, *114*, 4650–4658

## La deslocalització electrònica com a mesura d'aromaticitat en anells macrocíclics

Joan Grèbol-Tomàs,<sup>a,b</sup> Eduard Matito,<sup>b,c</sup> Pedro Salvador<sup>a</sup>

*a, Universitat de Girona, Facultat de Ciències, Girona, Catalunya*

*b, Donostia International Physics Center, Donostia, Euskadi*

*c, Ikerbasque Foundation for Science, Bilbao, Euskadi*

[joan.grebol@dipc.org](mailto:joan.grebol@dipc.org)

L'aromaticitat és un dels conceptes químics més estesos, ideat per racionalitzar l'estabilitat i la reactivitat de molts compostos químics. Tot i això, és un concepte difús i no es pot mesurar en un laboratori experimental, fent que existeixin diferents eines computacionals per analitzar-lo. Els comunament anomenats índexs de compartició d'electrons han resultat una de les opcions més viables per l'estudi d'aquesta propietat. D'entre tots, en destaquen els índexs multicèntrics.<sup>1</sup>

Per una banda, l'**Iring**<sup>2</sup> mesura la deslocalització al voltant de l'anell com a un ordre d'enllaç generalitzat. Té un cost computacional mínim, però pot presentar resultats erronis en certes situacions. Per altra banda, l'**MCI**<sup>3</sup> mesura la deslocalització a través de l'anell tenint en compte les **n!** permutacions que la connectivitat pot tenir respecte l'estructura Kekulé. Aquest darrer índex és el que reproduïx més correctament l'aromaticitat esperada d'una molècula, i alhora té la capacitat d'estudiar-la de manera tridimensional. Tot i això, el seu elevat cost computacional el fa inviable per anells de mida gran, ja que creix exponencialment respecte el nombre d'àtoms a analitzar. Per tant, és de gran interès tenir un índex amb la versatilitat de l'MCI però amb un cost computacional molt menor, que permetria estudiar sistemes monodimensionals (*all-metal clusters*), bidimensionals (macrocicles) o tridimensionals.

Així doncs, en aquest projecte s'han dissenyat diferents algorismes de generació de connectivitats per aproximar el valor d'aquest indicador, basats en la premisa de quines són les permutacions que realment contribueixen en el càlcul d'aquest. Per conseqüència, es pot obtenir una reducció substancial del seu cost computacional mentre que s'assoleix un valor molt proper a l'esperat. En l'estudi de diferents anulens de mides entre 8 i 14, s'aconsegueix reproduir fins un 99.5% del valor exacte utilitzant un nombre molt reduït de permutacions.

1. F. Feixas *et al.*, *J. Comput. Chem.*, **2008**, 29(10), 1543-1554.
2. M. Giambiagi, *et al.*, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **2000**, 2, 3381-3392.
3. P. Bultinck, *et al.*, *J. Phys. Org. Chem.*, **2005**, 18, 706-718.

## Estudi computacional de la interacció de productes naturals i curcuminoids amb el Citocrom P450 CYP6CM1

**Mercè Alemany-Chavarria<sup>a</sup>, Nikolaos E. Labrou<sup>b</sup>, Jean-Didier Maréchal<sup>b</sup>**

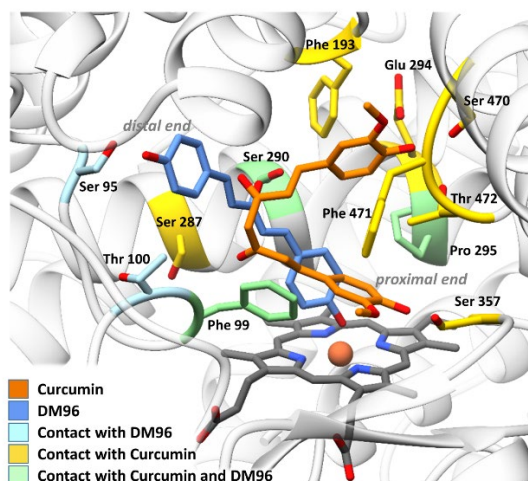
*a, Departament de Química, Universitat Autònoma de Barcelona, Cerdanyola, Barcelona, Catalunya.*

*b, Laboratory of Enzyme Technology, Department of Biotechnology, School Applied Biology and Biotechnology, Agricultural University of Athens, Atenes, Grècia.*

*merce.alemany@uab.cat*

La mosca blanca *Bemisia tabaci*, una pesta que afecta al cultiu de cotó i de moniato, ha desenvolupat resistència a varis pesticides d'origen químic que s'han utilitzat pel seu control al llarg de les últimes dècades [1]. Aquesta resistència ha vingut conferida per la variant de l'enzim citocrom P450 coneguda com CYP6CM1, una monooxigenasa que s'ha relacionat directament amb una major capacitat de desintoxicació i a una millora del metabolisme de certs neonicotinoids [2]. Inhibidors d'aquesta proteïna podrien actuar sinèrgicament amb els pesticides ja coneguts [3].

Partint de la seqüència de la proteïna s'ha creat un model del sistema i s'ha estudiat amb dockings proteïna-l·ligand com una sèrie de productes naturals i de derivats de la curcumina, proposats i estudiats en assajos experimentals, interaccionen amb el centre actiu.



1. N. Rauch, R. Nauen, Archives of Insect Biochemistry and Physiology, 2003, 54, 165-176.
2. A. Pym, J. Mina, Insect Biochemistry and Molecular Biology, 2023, 156, 1039934.
3. G. Cui, H. Yuan, Ecotoxicology and Environmental Safety, 2022, 229, 113097.

## Catàlisis Verda: Àtoms Metàl·lics Suportats com a Catalitzadors per a Reaccions Sostenibles

Sergio Posada-Pérez,<sup>ab</sup> Anna Vidal-López,<sup>b</sup> Albert Poater,<sup>b</sup> Miquel Solà,<sup>b</sup>  
Mercedes Alonso,<sup>a</sup> Frank de Proft<sup>a</sup>

*a, Eenheid Algemene Chemie (ALGC), Vrije Universiteit Brussel (VUB),  
Pleinlaan 2, 1050 Brussels, Belgium*

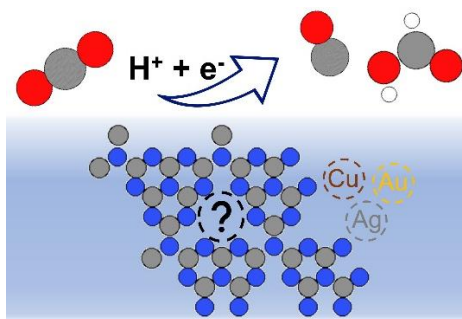
*b, IQCC, Universitat de Girona, C/ Maria Aurèlia Capmany, 69, 17003  
Girona, Catalunya, Espanya*

El desenvolupament de catalitzadors eficients per a la reducció electroquímica de CO<sub>2</sub> (CO<sub>2</sub>RR) i la síntesi d'amoniac (NRR) és essencial per assolir els objectius de descarbonització establerts a l'Agenda 2030. No obstant això, ambdues reaccions pateixen una baixa selectivitat degut a la competència amb la reacció d'evolució d'hidrogen (HER). En aquest context, volem utilitzar càlculs de la teoria del funcional de la densitat per a dissenyar catalitzadors basats en àtoms suportats (Single-Atom Catalysts, SACs) utilitzant matrius carbonoses dopades amb nitrogen.

Aquest estudi aborda dues qüestions fonamentals: és significatiu explorar exhaustivament catalitzadors per a NRR i CO<sub>2</sub>RR sense avaluar prèviament la seva competència amb HER? Val la pena calcular sistemàticament totes les etapes i camins de reacció d'ambdues reaccions si amb un sol càlcul es pot saber si seran catalitzadors selectius?

Mitjançant el càlcul dels sobrepotencials necessaris per a produir hidrogen, es pretén establir una metodologia de cribratge que optimitzi la selecció de catalitzadors prometedors. Els nostres estudis càlculs reproduïen els experiments i mostren com la HER té un paper molt significatiu alhora de predir catalitzadors per a la NRR i la CO<sub>2</sub>RR [1,2].

Aquesta línia d'investigació va començar a la Universitat de Girona i és el projecte principal del contracte Marie Curie Eutopia-SIF a la Vrije Universiteit Brussel.



1. S. Posada-Pérez, A. Vidal-López, M. Solà and A. Poater, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **2023**, 25, 8574-8582
2. C. Cometto, A. Ugolotti, E. Grazietti, A. Moretto, G. Bottaro, L. Armelao, C. Di Valentin, L. Calvillo and G. A. Granozzi, *npj 2D Mater. Appl.*, **2021**, 5, 63.

## Desxifrant sistemes supramoleculars a nivell atòmic: dinàmica i catàlisi en l'espai confinat amb [2]-rotaxanes

Cristina Berga,<sup>a</sup> Marc Garcia-Borràs,<sup>a</sup> Ferran Feixas<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Universitat de Girona, Institut de Química Computacional i Catàlisi,  
 Departament de Química, Catalunya.  
 cristinaberga8@gmail.com

Els sistemes supramoleculars, com els rotaxanes, són coneguts per la seva dinàmica conformacional complexa i la seva versatilitat funcional en espais confinats. En aquests sistemes, el reconeixement molecular, la reorganització estructural i la catàlisi es produeixen en diverses escales de temps, que van des de femtosegons fins a segons. Això planteja reptes importants per a les simulacions de dinàmica molecular (MD) convencionals, que sovint tenen dificultats per capturar les transicions lentes i els esdeveniments poc freqüents que són essencials per desxifrar els mecanismes funcionals. [1,2]

En aquest treball, investiguem la dinàmica i l'activitat catalítica de dos sistemes (P i W, Figura 1) basats en [2]rotaxanes.[3,4] Mitjançant la dinàmica molecular accelerada gaussiana (GaMD), superem les limitacions de les MD tradicionals i explorem el paisatge conformacional d'aquests sistemes. En particular, estudiem el comportament dinàmic i la flexibilitat estructural, amb especial atenció a la identificació dels estats conformacionals clau i les seves transicions. A més, analitzem el mecanisme catalític del sistema W dins de la seva arquitectura supramolecular confinada, per entendre millor com les propietats dinàmiques influeixen en la seva funció catalítica. Combinant tècniques de mostreig ampliat (*enhanced sampling*) amb eines d'anàlisi, aportem noves perspectives sobre la interacció entre la dinàmica conformacional i la funció catalítica en rotaxanes. Els nostres resultats subratllen la utilitat de GaMD per desxifrar els detalls mecanístics en espai confinat dels sistemes supramoleculars, obrint el camí per a una comprensió més profunda del seu disseny i aplicació en catàlisi.

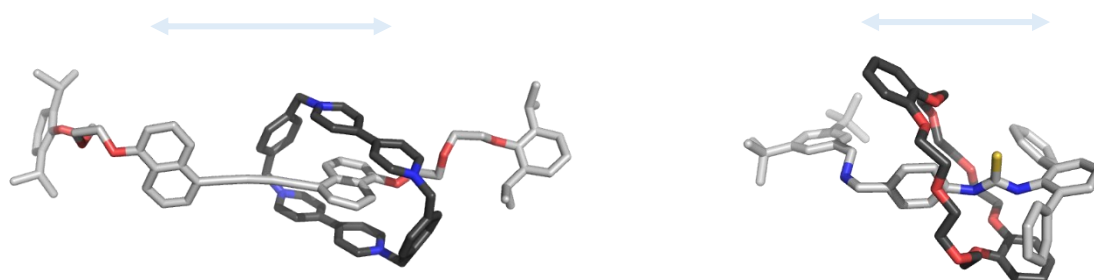


Figura 1. Sistemes P i W, respectivament.

1. T. Piskorz, V. Martí-Centelles, T. Young, P. Lusby, F. Duarte, *ACS Catal.* **2022**, *12*, 5806–5826.
2. C. Kwamen, J. Niemeyer, *Chem: Eur J.* **2021**, *27*, 175–186.
3. L. Leanza, C. Perego, L. Pesce, M. Salvalaglio, M. von Delius, G. M. Pavan, *Chem Sci* **2023**, *14*, 6716–6729.
4. J. Lim, N. Yuntawattana, P. Beer, C. Williams, *Angew. Chem.* **2019**, *131*, 6068–6072.

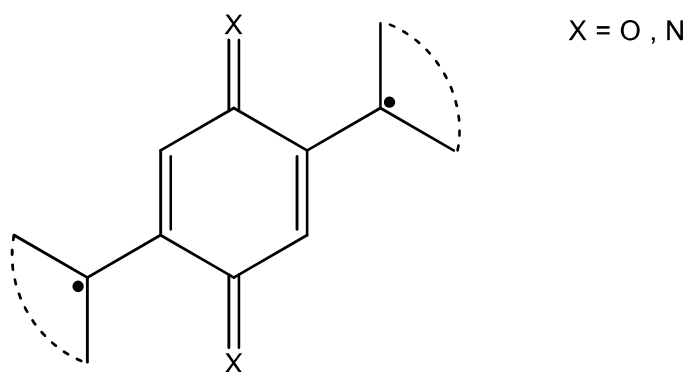
## Disseny de diradicals sintetitzables de spin alt per mitjà d'un mecanisme de transferència de càrrega

Arnau Cortés Llamas, Jordi Ribas Ariño, Stefan T. Bromley

Universitat de Barcelona, Departament de Ciència de Materials i Química Física i IQTCUB, Martí i Franquès 1, E-08028 Barcelona  
 arnau.cortes@ub.edu

La recerca de molècules pont o *linkers* que permetin un acoblament ferromagnètic fort entre radicals orgànics és important per al desenvolupament de nous diradicals[1] i nous materials orgànics amb aplicacions en espintrònica.[2] Tot i que s'han estudiat prèviament diverses solucions, com l'ús de connectivitats *meta* (per exemple, el *m*-xilè), el nombre de *linkers* que permeten un acoblament ferromagnètic fort en sistemes químicament estables i que es puguin escalar a materials bidimensionals com els COFs [3](retícules covalents orgàniques, en anglès "Covalent Organic Frameworks") és encara molt reduït.

En aquest estudi, explorem la possibilitat d'aconseguir una resposta ferromagnètica elevada mitjançant l'ús de topologies específiques i un mecanisme de transferència de càrrega en sistemes orgànics. Aquesta transferència de càrrega és un factor clau per potenciar el ferromagnetisme en els sistemes, i l'hem aconseguit combinant un *linker* electroatrant (en el nostre cas, la benzoquinona) amb radicals electrodonadors. Els sistemes dissenyats presenten una estabilitat, facilitat per a la seva síntesi i el seu posterior ús per a la construcció de materials bidimensionals. A més, aquests sistemes presenten absorció intensa de radiació electromagnètica a l'infraroig proper. Aquest estudi s'ha dut a terme fent servir càlculs DFT i càlculs *ab initio* multiconfiguracionals.



1. Nolan M. Gallagher, Arnon Olankitwanit, Andrej Rajca, *J. Org. Chem.* **2015**, 80, 1291–1298.
2. Sha Yang, Shuang Li, Ji-Chang Ren, *Chem. Mater.* **2020**, 32, 9609–9615.
3. Hongde Yu, Dong Wang, *J. Am. Chem. Soc.* **2020**, 142, 11013–11021.

## ***Estudi computacional de les interaccions no covalents entre nanopartícules de Ag/Au i aminoàcids***

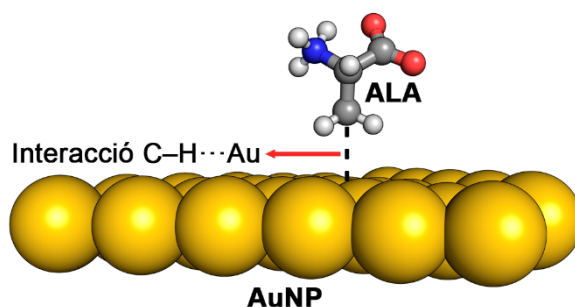
**Catalina Nicolau, Maria de las Nieves Piña i Antonio Bauzá**

*a, Universitat de les Illes Balears, Departament de Química, Palma de Mallorca, Espanya*

*catalina.nicolau3@estudiant.uib.cat*

En els últims anys, l'ús de nanopartícules d'or i plata en el camp de la biomedicina ha experimentat un creixement exponencial, principalment en el seu ús com a suports en l'administració de fàrmacs i en aplicacions de detecció i diagnòstic.[1] No obstant això, un dels principals reptes en aquest camp deriva de l'adhesió no específica de les proteïnes sobre la superfície de les nanopartícules (NPs), fet que pot comprometre la seva funcionalitat.[2] Per consegüent, és important conèixer les interaccions no covalents implicades al procés de reconeixement molecular nanopartícula-proteïna, fet que s'ha estudiat amb models de dinàmica molecular, [3,4] els quals són insuficients per comprendre la naturalesa química de les interaccions implicades.

En aquest estudi es presenta una anàlisi computacional de les interaccions entre els vint aminoàcids essencials i models de Au/AgNPs al nivell de teoria PBE0-D3/def2-TZVP. Els resultats mostren diferents tipus d'interaccions no covalents (com per exemple, C–H···metall, d'enllaç *Regium* o d'enllaç *Regium*- $\pi$ ) com a principals responsables del reconeixement molecular nanopartícula-aminoàcid. Aquestes interaccions s'han caracteritzat mitjançant tècniques computacionals com l'anàlisi de les superfícies de potencial electroestàtic molecular (MEP), per tal de caracteritzar l'electroestàtica de la interacció o l'anàlisi d'Orbitals Naturals d'Enllaç (NBO) per identificar la presència d'interaccions orbital·liques entre les NPs i els aminoàcids. A més, també s'han realitzat anàlisis de descomposició d'energia (EDA) per tal d'avaluar la contribució dels diferents termes energètics a la formació dels complexos supramoleculars estudiats i de *Non Covalent Interaction plot* (NCIplot) per tal de donar una visió qualitativa d'aquestes forces i la seva extensió a l'espai.



1. G. Pasparakis, *WIREs Nanomed. Nanobiotechnol.* **2022**, *14*, e1817.
2. M. Drozd, A. Duszczuk, P. Ivanova, M. Pietrzak, *Adv. Colloid Interface Sci.* **2022**, *304*, 102656.
3. F. Ramezani, M. Amanlou, H. Rafii-Tabar, *Amino Acids* **2014**, *46*, 911–920.
4. Q. Shao, C. K. Hall, *Langmuir* **2016**, *32*, 7888–7896.



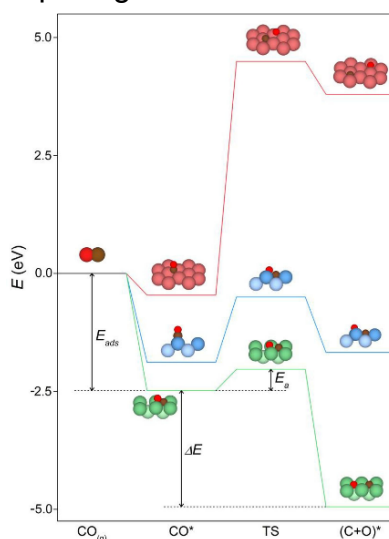
## Descriptors per l'adsorció, difusió i dissociació de CO en superfícies de metalls de transició

David Vázquez-Parga,<sup>a</sup> Alberto Roldán,<sup>b</sup> Ángel Morales-García,<sup>a</sup> Francesc Viñes<sup>a</sup>

*a, Universitat de Barcelona, Departament de Ciència de Materials i Química Física, Barcelona, Espanya.*

*b, Cardiff University, School of Chemistry, Cardiff, Regne Unit.  
 david.vazquez@ub.edu*

L'adsorció, difusió i dissociació del monòxid de carboni (CO) s'ha estudiat en tres superfícies de 27 metalls de transició (TM) que presenten estructures cristal·lines *bcc* (*body-centered cubic*), *fcc* (*face-centered cubic*) o *hcp* (*hexagonal close package*). Per a cada superfície, s'han estudiat les adsorpcions de CO i les co-adsorpcions de C+O mitjançant càlculs de la teoria del funcional de la densitat (DFT – *Density Functional Theory*) amb el funcional de Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) més la correcció de Grimme D3 per les forces dispersives. Es van determinar les energies de reacció i d'activació de dissociació de CO i la barrera energètica de difusió del CO entre les dues posicions més estables a la superfície. Els valors, incloent-hi l'energia del punt zero, es van utilitzar per capturar les tendències químiques i descriptors utilitzant algoritmes d'intel·ligència artificial. S'ha trobat que els TMs tardans adsorbeixen el CO feblement i perpendicularment, al contrari dels TMs primerencs, a la vegada que els casos entremitjos es distribueixen entre aquests dos extrems.<sup>1</sup> L'energia d'adsorció de CO té tres descriptors principals: el centre de la banda *d*, l'energia de superfície i el mòdul de compressibilitat. Tanmateix, per a l'energia de co-adsorció de C i O, l'energia de reacció i la barrera d'activació, no s'ha trobat una bona combinació de descriptors. Per a la barrera de difusió, l'energia d'adsorció, el nombre de coordinació i el camí recorregut en la difusió del CO actuen com a descriptors. No obstant això, la diferència en els llocs més estables i els camins de difusió en la reacció fan que sigui una tendència altament dispersa.



1. D. Vázquez-Parga, A. Jurado, A. Roldan, F. Viñes. *Appl. Surf. Sci.* **2023**, 618, 156581

## Forma i simetria dels poliedres de coordinació en compostos dels lantànids

Laura Sánchez-Muñoz,<sup>a</sup> Jordi Cirera,<sup>b</sup> Pere Alemany<sup>a</sup>

*a, Universitat de Barcelona, Dep. de Ciència de Materials i Química Física i Institut de Química Teòrica i Computacional (IQTC-UB)*

*b, Universitat de Barcelona, Dep. Química Inorgànica i Orgànica i Institut de Química Teòrica i Computacional (IQTC-UB), Barcelona.  
laurasanchez@ub.edu*

Els compostos de coordinació de lantànids han generat un gran interès a causa de les seves propietats òptiques i magnètiques.[1] No obstant això, l'obtenció d'aquests compostos representa un repte ja que la naturalesa iònica de les interaccions metall-ligand fan que l'entorn de coordinació dels metalls sigui força flexible, dificultant-ne la cristal·lització. Malgrat que des del punt de vista teòric, les solucions del problema de Thomson, que estudia la distribució òptima de càrregues elèctriques sobre una esfera, ofereix un marc per predir els poliedres de coordinació preferits per a aquests compostos,[2] la manca de dades estructurals limita la capacitat d'identificar patrons estereoquímics.

En aquest treball, hem realitzat una anàlisi exhaustiva de les estructures experimentals dipositades a la *Cambridge Structural Database* (CSD) emprant mesures contínues de forma i de simetria,[3] cobrint compostos amb nombres de coordinació entre 2 i 14. S'han analitzat també les energies associades a cada poliedre de coordinació possible, considerant tant el problema de Thomson corresponent com emprant càlculs basats en la teoria del funcional de densitat (DFT) per a models  $[\text{Ln}(\text{H}_2\text{O})_n]^{3+}$  amb  $n = 2-14$  i  $\text{Ln} = \text{La}-\text{Lu}$ , deduint en cada cas les preferències estereoquímiques en funció del ió  $\text{Ln}^{3+}$  i el nombre de coordinació  $n$ .

**Figura 1. a)** Exemple d'estructura amb ions  $\text{Eu}(\text{III})$  en diferents entorns de coordinació, **b)** Diferents

perspectives dels poliedres més freqüents per la coordinació 8.

1. Bünzli, G. Jean-Claude, *Coord. Chem. Rev.*, **2015**, 293–294, 19–47.
2. J. J. Thomson, *Philos. Mag.* **1904**, 39, 237–265.
3. S. Alvarez, P. Alemany, D. Casanova, J. Cirera, M. Lluell, D. Avnir *Coord. Chem. Rev.*, **2005**, 249, 1693–1708.

## Estudi Teòric de la Formació de Interfases d'Heteroestructures Tipus TiO<sub>2</sub>/Ti<sub>2</sub>CT<sub>x</sub>

Néstor García-Romeral,<sup>\*a</sup> Giovanni Di Liberto,<sup>b</sup> Ángel Morales-García,<sup>a</sup>  
 Francesc Viñes,<sup>a</sup> Francesc Illas,<sup>a</sup> Gianfranco Pacchioni<sup>b</sup>

*a, Universitat de Barcelona, Departament de Ciència de Materials i  
 Química Física & Institut de Química Teòrica i Computacional  
 (IQTUB), c/ Martí i Franquès 1-11, 08028, Barcelona, Espanya.*

*b, Università di Milano–Bicocca, Dipartimento di Scienza dei Materiali,  
 via R. Cozzi 55, 20125, Milano, Itàlia.*

*\*nestorgarcia-romeral@ub.edu*

Les heteroestructures compostes per TiO<sub>2</sub> i MXenes, una família de materials 2D compostos per metalls de transició, carboni i/o nitrogen, han adquirit una importància rellevant en el món de la fotocatalisi degut a les seves aplicacions amb implicacions ecològiques, com la fotoreducció de CO<sub>2</sub>,<sup>[1]</sup> producció de H<sub>2</sub>,<sup>[2]</sup> i fixació de N<sub>2</sub>.<sup>[3]</sup> En aquest estudi computacional en el marc de la Teoria del Funcional de la Densitat (DFT), s'estudia la influència de diversos factors, com el tipus de funcionalització de les superfícies dels MXenes, el polimorf de TiO<sub>2</sub>, la cara exposada d'aquest segon i l'efecte de funcional de intercanvi i correlació (PBE i HSE06) en la interacció entre TiO<sub>2</sub> i MXenes de Ti. Els resultats d'aquest estudi revelen que la interacció està majoritàriament governada per la funcionalització dels MXenes. Pels grups Cl, F, i O, la interacció és de tipus Van der Waals, mentre que pels H i OH la interacció implica la formació d'enllaços. Altrament, l'efecte del funcional de intercanvi i correlació té una mínima influència en la descripció de la interacció entre aquests sistemes. A més a més, l'anàlisi de la polarització de la superfície evidencia una transferència sistemàtica de càrrega des de la superfície del MXene cap al TiO<sub>2</sub>, influenciada també per la funcionalització del MXene. Finalment, l'estructura electrònica HSE06 mostra l'aparició d'estats de MXene en meitat del *band gap* del TiO<sub>2</sub>.

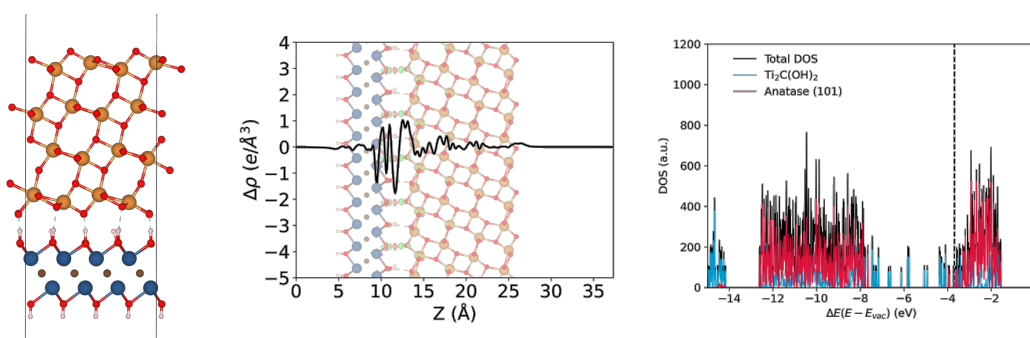


Figura. Exemple d'heteroestructura TiO<sub>2</sub>/MXene (esquerra), transferència de càrrega (centre) i densitat d'estats (dreta).

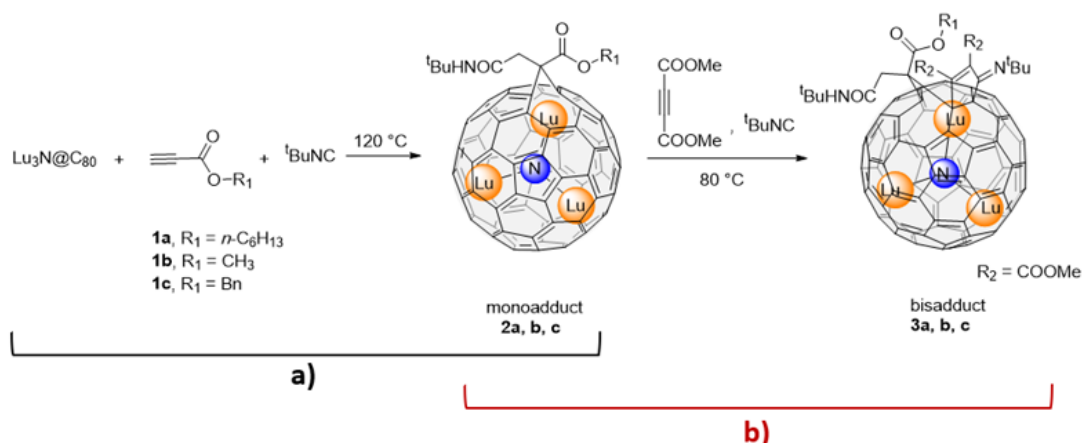
1. J. Low, L. Zhang, *et al.* *J. Catal.* **2018**, 361, 255–266.
2. X. Kong, Z. Peng, *et al.* *Gao. ACS Appl. Nano Mater.* **2020**, 3, 1373–1381.
3. W. Gao, X. Li, S. *et al.* *J. Colloid Interface Sci.* **2021**, 585, 20–29.

## Estudi dels bisadductes de reaccions multicomponent en metal·lofullerens endoèdrics

Daniel Torrens, Laura Abella, Antonio Rodríguez-Fortea

Universitat Rovira i Virgili, Departament de Química Física i Inorgànica,  
 Tarragona, Espanya.

Recentment, el grup del Prof. J. Zhang en la Universitat de Rutgers (USA), en col·laboració amb el nostre grup de la URV, ha publicat les primeres reaccions multicomponent basades en isocianurs amb metal·lofullerens endoèdrics (*endohedral metallofullerenes*, EMFs), obrint noves vies per manipular ions metàl·lics encapsulats mitjançant tècniques de química orgànica dins l'arquitectura única hoste-convidat dels EMFs.<sup>1,2</sup> S'han explorat reaccions entre <sup>t</sup>BuNC, alquins amb grups electró atractius i Lu<sub>3</sub>N@I<sub>h</sub>(7)-C<sub>80</sub>. Sorprenentment, s'han obtingut *metallofulleroids* amb estructures on s'ha trencat un enllaç de tipus [6,6] del full·lerè (*open fulleroid*).<sup>1,2</sup> Darrerament, el grup del Prof. Zhang ha observat una segona addició que forma una estructura amb un anell pentagonal tancat, en contrast amb l'estructura oberta de la primera etapa (Figura 1). La seqüència de reacció utilitza un alquí terminal en el primer pas i un alquí intern (DMAD) en el segon, sent aquesta l'única combinació que dona resultats satisfactoris. En el nostre grup hem realitzat càlculs DFT (PBE0/TZP) per entendre per què el segon lligand s'uneix a un enllaç adjacent, compartint un àtom de carboni del full·lerè amb el primer lligand, així com les condicions i mecanismes que governen la via de reacció completa, explorant variacions en l'ordre dels alquins utilitzats. Aquesta recerca demostra el potencial de les reaccions multi component basades en isocianurs per manipular EMFs, obrint noves possibilitats en la química dels full·lerens i en el disseny de nous materials funcionals.



**Figura 1.** Esquema de la reacció d'addició seqüencial a l'endofullerè Lu<sub>3</sub>N@I<sub>h</sub>(7)-C<sub>80</sub>. (a) Primera addició amb alquí terminal. (b) Segona addició amb alquí intern (DMAD).

1. Y. B. Li, T. J. Emge, A. Moreno-Vicente, W. P. Kopcha, Y. Sun, I. F. Mansoor, M. C. Lipke, G. S. Hall, J. M. Poblet, A. Rodríguez-Fortea, and J. Zhang. *Angew. Chem. Int. Ed.* **2021**, *60*, 25269-25273.
2. Y. Li, W. P. Kopcha, A. Rodríguez-Fortea, J. Zhang. *Synlett* **2022**, *33*, 907-912.

## Estudi de la Reacció de Reducció d'Oxigen (ORR) utilitzant un *covalent organic radical framework* com a electrocatalitzador

Dani Blas Buch, Jordi Ribas Ariño, Stefan T. Bromley

<sup>a</sup>Universitat de Barcelona, Departament de Ciència de Materials i Química Física i IQTCUB, Barcelona, Espanya.  
 e-mail: dblasbuch@gmail.com

Aquest estudi investiga l'ús de Covalent Organic Radical Frameworks (CORFs) basats en radicals policlorotrifenilmetil (PTM) com a electrocatalitzadors per a la reacció de reducció de l'oxigen (ORR), un procés essencial en les cèl·lules de combustible que es veu limitat per una cinètica lenta. Els PTM-CORFs tenen una baixa energia LUMO i una baixa estabilitat cinètica, fet que els fa potencialment eficients per a l'ORR en medi bàsic<sup>1</sup>. Mitjançant càlculs basats en la teoria del funcional de la densitat (DFT), s'han analitzat l'estructura electrònica i l'estabilitat dels intermedis de la reacció (vegeu Figura 1). En els càlculs, s'ha fet servir l'elèctrode reversible d'hidrogen (RHE) com a elèctrode de referència<sup>2</sup>.

Els resultats mostren que les etapes de la reacció són espontànies, amb energies de Gibbs negatives, fins i tot sense aplicació de potencial. Quan s'aplica un potencial superior a 0,4 V respecte a l'elèctrode de referència SHE, les energies es redueixen encara més, indicant una resposta favorable del material. Els càlculs realitzats demostren que els PTM-CORFs mostren característiques prometedores com a electrocatalitzadors, gràcies a la seva estructura espacial i configuració electrònica, que els permet interactuar eficaçment amb les espècies involucrades en l'ORR. Aquests resultats assenyalen un bon potencial per a la seva aplicació en futurs estudis de catàlisi en cèl·lules de combustible.

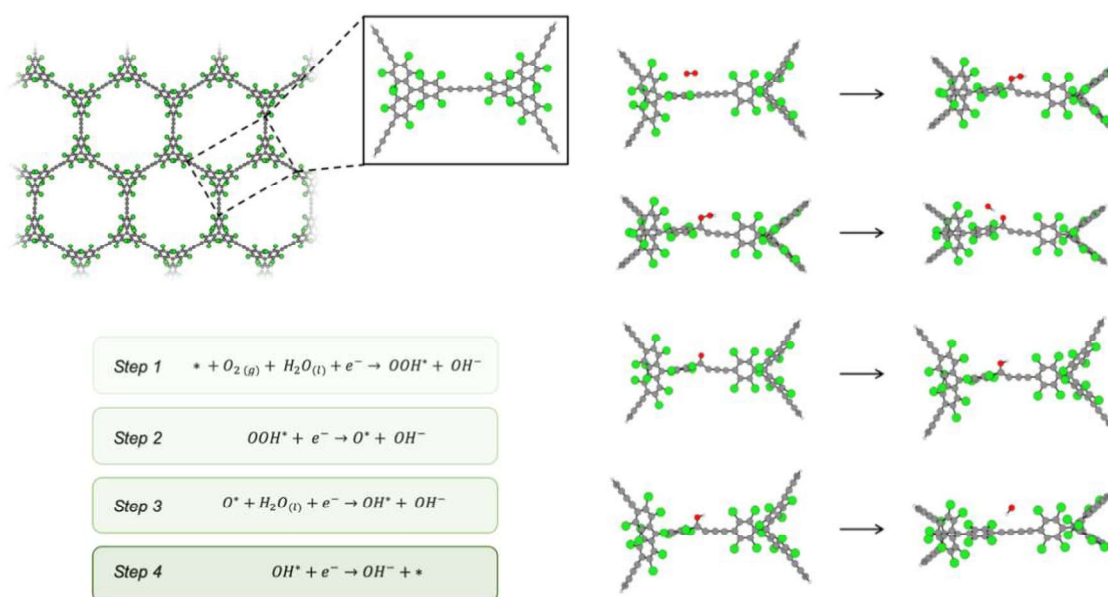


Figura 1. a) Model utilitzat, b) Etapes de la ORR, c) Intermedis de la ORR.

- 1) Wu, S.; Li, M.; Phan, H.; Wang, D.; Herng, T. S.; Ding, J.; Lu, Z.; Wu, J. Toward Two-Dimensional  $\pi$ -Conjugated Covalent Organic Radical Frameworks. *Angew. Chem.* **2018**, *130*(27), 8139–8143. DOI: 10.1002/ange.201801998.
- 2) Liang, Q.; Brocks, G.; Bieberle-Hütter, A. Oxygen evolution reaction (OER) mechanism under alkaline and acidic conditions. *J. Phys.* **2021**, *3*(2), 026001. DOI: 10.1088/2515-7655/abdc85.

## Explorant les Propietats Fotoactives dels MXens per a la Divisió de l'Aigua

Diego Ontiveros, Francesc Viñes, Carme Sousa

*Departament de Ciència de Materials i Química Física & Institut de Química Teòrica i Computacional (IQTCUB), Universitat de Barcelona, c/ Martí i Franquès 1-11, 08028, Barcelona, Spain*

Els MXens són una extensa família de carburs i nitrurs de metalls de transició bidimensionals que han captat una gran atenció en diversos camps, des de l'electrocatalisi i les aplicacions energètiques i mediambientals fins als sensors. Un dels seus àmbits d'interès destacats és la fotocatalisi, especialment en processos com el trencament de la molècula d'aigua. Quan les vores de les bandes de valència i conducció dels MXens estan alineades adequadament amb els potencials estàndard de les semireaccions redox, aquests materials poden ser candidats prometedors per generar hidrogen verd a partir d'aigua, aprofitant la llum solar com a font d'energia.

En aquest estudi, hem seleccionat un grup de 10 MXens extrets d'un cribratge computacional d'entre més de 4.000 estructures de MXens,<sup>1,2</sup> i hem dut a terme una anàlisi exhaustiva per avaluar el seu potencial en la fotocatalisi del trencament de l'aigua. Això inclou l'avaluació de les seves propietats electròniques i el càlcul de l'alineació de bandes, així com el còmput de diverses propietats fotocatalítiques, com ara la densitat de càrrega a les vores de les bandes, les mobilitats d'electrons i forats en diferents direccions, els espectres d'absorció òptica i les estimacions de l'eficiència de conversió solar a hidrogen. Els resultats demostren el gran potencial fotocatalític dels MXens per a la ruptura de l'aigua, ja que presenten una bona absorció en l'espectre visible, mobilitats elevades i anisòtropes dels portadors de càrrega, així com estabilitat dinàmica. Aquestes característiques fan que els MXens estudiats sobresurtin dins l'àmplia gamma de possibles MXens.



**Figura 1** Resum gràfic de l'estudi, on es destaquen les diferents propietats investigades.

<sup>1</sup> D. Ontiveros, F. Viñes, C. Sousa, *J. Mater. Chem. A* **2023**, *11*, 13754–13764.

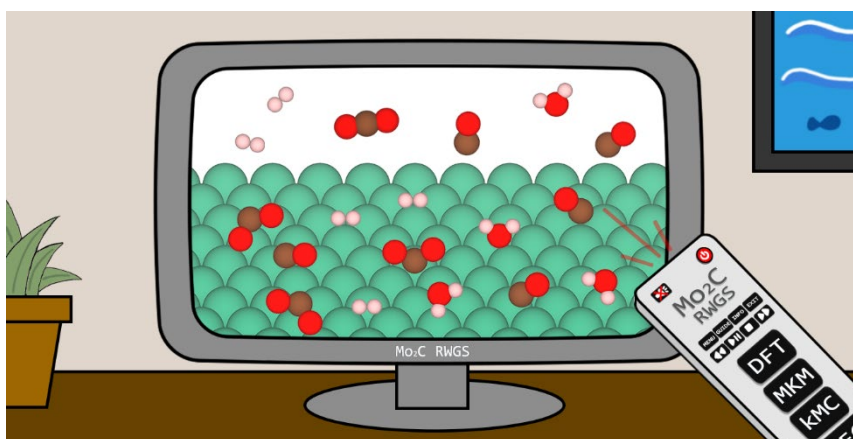
<sup>2</sup> D. Ontiveros, S. Vela, F. Viñes, C. Sousa, *Energy Environ. Mater.* **2024**, *7*, e12774.

## Comprensió de la Reacció de Desplaçament de Gasos Inversa sobre un Catalitzador Mo<sub>2</sub>C MXene: Una Anàlisi Computacional Holística

Daniel Dolz,<sup>a</sup> Raúl De Armas, Pablo Lozano-Reis, Ángel Morales-García,<sup>a</sup> Francesc Viñes,<sup>a</sup> Ramón Sayós,<sup>a</sup> Francesc Illas<sup>a</sup>

<sup>a</sup>, Universitat de Barcelona, Departament de Ciència de Materials i Química Física & Institut de Química Teòrica i Computacional, Barcelona, Spain.

El MXene Mo<sub>2</sub>C prístí ha estat proposat com a catalitzador heterogeni per a la reacció de desplaçament invers d'aigua en gas (RWGS – *Reverse Water Gas Shift*). S'ha fet un estudi computacional que pretén entendre el seu rendiment catalític i els mecanismes de reacció abordant la seva termodinàmica, cinètica i efectes dinàmics de la superfície, combinant perfils d'energia lliure de Gibbs obtinguts per *density functional theory* (DFT), cinètica mitjançant modelització microcinètica, i esdeveniments rars mitjançant *kinetic Monte Carlo* (kMC). La endergonicitat de la RWGS indica la necessitat de temperatures elevades i pressions parcials de reactius per fer la reacció exergònica. Els perfils d'energia lliure de Gibbs mostren una preferència pel mecanisme redox, mentre que les simulacions microcinètiques afavoreixen una preferència a baixa temperatura pel mecanisme de format. El kMC revela operacions simultànies de les vies redox i de format, on la cobertura de la superfície catalítica desfavoreix el mecanisme redox en favor del mecanisme de format. Es troba un rendiment màxim a 700 K, en línia amb altres estudis,[1] on la formació de O<sub>2</sub><sup>\*</sup> superficial resulta clau com a reservori per als àtoms O<sup>\*</sup>, alliberant llocs superficials amb la formació de O<sub>2</sub><sup>\*</sup>. Tot i que es preveu producció de CO i H<sub>2</sub>O elevada, el sistema podria beneficiar-se de condicions *swing operando*, alternant passos de producció de CO amb passos de regeneració per reducció d'H<sub>2</sub>, i/o maneres de reduir l'O<sub>2</sub><sup>\*</sup> superficial per disposar de més llocs catalítics actius.[2]



1. A. Jurado, Á. Morales-García, F. Viñes, F. Illas, *ACS Catalysis* **2022**, 12, 15658-15667.
2. D. Dolz, R. De Armas, P. Lozano-Reis, Á. Morales-García, F. Viñes, R. Sayós, F. Illas, *ChemCatChem* **2024**, 16, e202400122

## Estudi mecanístic de la funcionalització divergent biocatalítica d'enllaços C–H a partir d'espècies reactives Fe-nitrè de ferro-heme

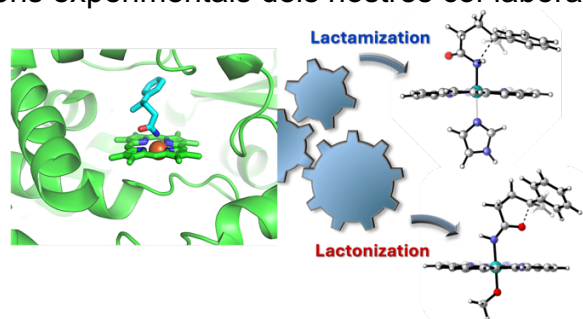
Hande Abeş,<sup>a</sup> Jordi Soler,<sup>a,b</sup> Ferran Feixas,<sup>a</sup> Marc Garcia-Borràs,<sup>a</sup>

*a, Universitat de Girona, Institut de Química Computacional i Catàlisi i Departament de Química, Girona, Espanya.*

*b, University of Oxford, Department of Chemistry, Oxford, Regne Unit.  
hande.abes@udg.edu*

Les enzims catalitzen reaccions químiques amb alta especificitat, eficiència i selectivitat. Moltes enzims requereixen cofactors que participen en cicles biocatalítics en els quals es formen intermedis reactius. Aquests intermedis reactius poden seguir vies de reacció divergents, donant lloc a la promiscuïtat enzimàtica fet que ofereix oportunitats per al disseny de noves transformacions catalitzades per enzims. La caracterització experimental d'aquests intermedis reactius és complexa a causa de les limitacions de les tècniques estructurals i espectroscòpiques.[1] Els mètodes computacionals multiescala ofereixen una alternativa per poder-los descriure precisió atòmica i en temps real.[2]

En aquest treball, ens proposem estudiar les diferències mecanístiques entre dues reaccions que involucren derivats de dioxazolona catalitzades per enzims que contenen ferro-heme: la síntesi de lactames mitjançant amidació intramolecular C–H i la reacció de lactonització per funcionalització intramolecular C–H.[3] La síntesi biocatalítica d'aquests processos presenta dificultats degut al control dels intermedis reactius i a la prevenció de reaccions competidores.[4] Per abordar aquests reptes, hem utilitzat un protocol de modelització multiescala que combina càlculs DFT amb models truncats i simulacions de dinàmica molecular. Els nostres resultats revelen diferències mecanístiques clau entre les vies de lactamització i lactonització i proporcionen una base molecular per explicar les diferents reactivitats observades en diversos enzims de ferro-heme. En particular, demostrem com la via de lactamització es pot suprimir, afavorint la formació de lactones com a producte dominant, en línia amb les observacions experimentals dels nostres col·laboradors.



1. M. Reetz, M. Garcia-Borràs, *J. Am. Chem. Soc.* **2021**, *143*, 14939.
2. A. Romero-Rivera, M. Garcia-Borràs, S. Osuna, *Chem. Commun.* **2017**, 53
3. J. Kweon, S. Chang, *Chem. Int. Ed.* **2021**, *60*, 2909–2914.
4. S. Roy, D.A. Vargas, P. Ma, A. Sengupta, L. Zhu, K.N. Houk, R. Fasan, *Nat. Catal.* **2024**, *7*, 65-76.



## Avaluació de la dinàmica conformacional dels enzims HSV-TK i EHV4-TK implicats en la terapia del gen suïcida contra el càncer.

Janet Sánchez,<sup>a</sup> Sílvia Osuna,<sup>a,b</sup>

*a, Institut de Química Computacional i Catàlisi (IQCC) i Departament de Química, Carrer Maria Aurèlia Capmany 69, 17003 Girona*

*b, ICREA, Pg. Lluís Companys 23, 08010 Barcelona, Spain.*

*janet.sanchez@udg.edu*

La teràpia del gen suïcida contra el càncer va emergir davant de la necessitat d'obviar els efectes secundaris dels tractaments convencionals contra aquesta patologia que cada vegada afecta a més persones. El punt clau de la teràpia és l'activació d'un profàrmac que no és tòxic per a cèl·lules sanes evitant precisament els efectes adversos. Breument, el mecanisme d'activació consisteix en la desprotonació d'un dels grups hidroxils del profàrmac a través del grup carboxil del residu catalític; seguit de la transferència del grup fosfat provinent de l'ATP. A la seva forma activada, el profàrmac ja pot ser fosforilat dos cops més per enzims cel·lulars fins a provocar la mort cel·lular de les cèl·lules canceroses<sup>[1,2]</sup>.

Els dos enzims més prometedors per a aquesta teràpia (Herpes Simplex Virus-Thymidine Kinase (HSV-TK) i l'Equine Herpes Virus Type 4- Thymidine Kinase (EHV4-TK)) no són prou eficients en la selecció i activació del profàrmac (Ganciclovir) perquè el seu substrat natural (Timidina) es troba de forma natural a les cèl·lules dificultant així la seva aplicació terapèutica<sup>[2,3]</sup>. Davant d'aquesta situació es va intentar millorar els enzims a nivell experimental obtenint la variant Ala168His<sup>[4]</sup> per la HSV-TK i Ser168His<sup>[5]</sup> per la EHV4-TK però els resultats no van ser prou satisfactoris.

A través de simulacions de dinàmica molecular i eines computacionals, s'ha estudiat la dinàmica conformacional tant pels enzims naturals com per les variants experimentals en presència dels diferents substrats naturals i no-naturals. Gràcies a aquestes dinàmiques, hem pogut identificar el conjunt de conformacions catalíticament actives i racionalitzar les diferències d'activitat front ambdós substrats.<sup>[6]</sup>

1. Karjoo, Z., et al., *Ad. Drug Del. Rev.* **2016**, 99, 113–128.
2. Fillat, C.; et al., *B. Curr Gene Ther* **2003**, 3 (1), 13–26.
3. Hossain, J. A.; et al., *The J. Gene Medicine* **2016**, 18 (9), 234–243.
4. Balzarini, J. et al. *J Biol Chem* **2006**, 281, 19273–19279.
5. McSorley, T., et al. *Biochem. Pharmacol.* **2014**, 87, 435–444
6. Sulpizi, M.; et al., *J Biol Chem.* **2001**, 276 (24), 21692–21697.

## Astrocatàlisi heterogènia. Modelització de processos de Fischer-Tropsch en el medi interestel·lar.

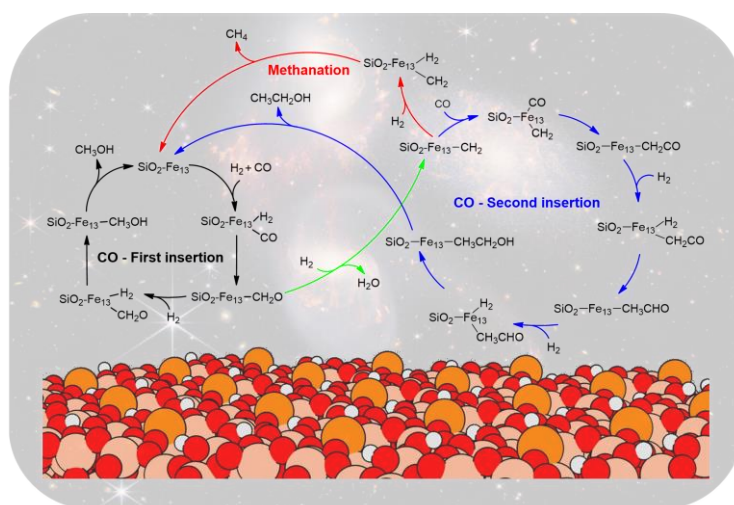
Gerard Pareras,<sup>a</sup> Victoria Cabedo,<sup>b</sup> Martin R. McCoustra,<sup>b</sup> Albert Rimola.<sup>a</sup>

*a, Departament de Química, Universitat Autònoma de Barcelona, Barcelona, Catalunya, Spain.*

*b, Institute of Chemical Sciences, School of Engineering and Physical Sciences, Heriot-Watt University, Edinburgh, Scotland, United Kingdom.*

Els processos catalítics són essencials tant en la química terrestre com en l'extraterrestre, exercint un paper crucial en la síntesi de combustibles, productes químics i farmacèutics, i també, promovent l'evolució química a l'espai. En el medi interestel·lar, les reaccions tradicionals en fase gas i sense catalitzar estan limitades per la manca d'una font d'energia i també, per l'absència d'un medi capaç de dissipar els excessos d'energia resultants. Els grans de pols interestel·lars, els quals poden actuar com a catalitzadors heterogenis, són fonamentals per explicar l'ocurrència dels processos químics en aquets entorns. En aquest estudi oferim noves perspectives sobre la formació d'alcohols i alguns de cadena curta mitjançant processos de Fischer-Tropsch. Tot i que la presència de metalls de transició, i en especial la del ferro, en el medi interestel·lar és ben coneguda, la naturalesa exacta de la seva ocurrència encara és objecte de debat. Per abordar aquesta qüestió, investiguem el potencial catalític de sistemes suportats com ara "single-atom" (SA) i nanoclústers (NC), així com del sulfur de ferro (FeS), com a possibles reservoris de ferro en l'espai exterior.

Els resultats del nostre estudi demostren que l'Astrocatàlisi és viable en condicions astrofísiques, obrint un nou ventall de vies sintètiques amb el potencial d'impulsar l'evolució química a l'espai. A més, els nostres resultats proporcionen informació valuosa sobre els mecanismes de la reacció Fischer-Tropsch i presenten possibles catalitzadors amb aplicacions prometedores també a la Terra.



## Estudi de la contribució electrostàtica en l'eficiència catalítica de retroaldolases evolucionades al laboratori

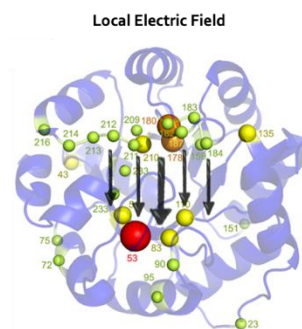
Aqza E. John,<sup>a</sup> Roberto A. Chica,<sup>b</sup> Ferran Feixas,<sup>a</sup> Marc Garcia-Borràs<sup>a</sup>

*a, Universitat de Girona, Institut de Química Computacional i Catàlisi i Departament de Química, Girona, Espanya.*

*b, University of Ottawa, Departament of Chemistry and Biomolecular Sciences, Ottawa, Canada  
 aqzaelza.john@udg.edu*

L'enzim retroaldolasa (RA95.0), dissenyat computacionalment, catalitza la ruptura d'un substrat de metodol amb activitat retroaldòlica inicial.[1] Basant-se en aquest disseny, es va dur a terme evolució dirigida per generar diverses variants essent RA95.5-8F la que presenta l'activitat catalítica més alta.[2] L'impacte de mutacions distals en la reconfiguració de la dinàmica conformacional de l'enzim al llarg de la via evolutiva ha estat descrita prèviament.[3] Càlculs QM/MM revelen que les interaccions electrostàtiques entre el substrat i els residus de la proteïna són clau per establir els estats de transició i intermedis.[4] Això suggereix que les mutacions introduïdes al centre actiu i a la perifèria han reconfigurat l'entorn electrostàtic.

En aquest treball, ens proposem investigar i racionalitzar el paper de les interaccions electrostàtiques de les mutacions del centre actiu i de la perifèria mitjançant modelització multiescala. Primer, hem realitzat simulacions de dinàmica molecular de RA95.0 (el disseny inicial) i RA95.5-8F (l'enzim evolucionat), així com variants que contenen mutacions del centre actiu i de la perifèria de RA95.5-8F. Posteriorment, hem quantificat el camp elèctric al centre actiu i hem avaluat la contribució de cada residu. L'anàlisi dels efectes de les mutacions va indicar que les mutacions distals influeixen en la dinàmica conformacional dels *loops* flexibles, afavorint l'orientació adequada del camp elèctric generat al centre actiu per facilitar la reacció. Hem trobat que el camp elèctric de la variant evolucionada estabilitza millor l'estat de transició de ruptura de l'enllaç C-C que la variant basada en mutacions del centre actiu. Aquestes observacions estan en línia amb les dades experimentals. Els nostres resultats subratllen el paper crític de les mutacions distals en l'activitat catalítica, suggerint que l'optimització de l'orientació del camp elèctric pot reduir la barrera energètica i millorar l'eficiència de la reacció.



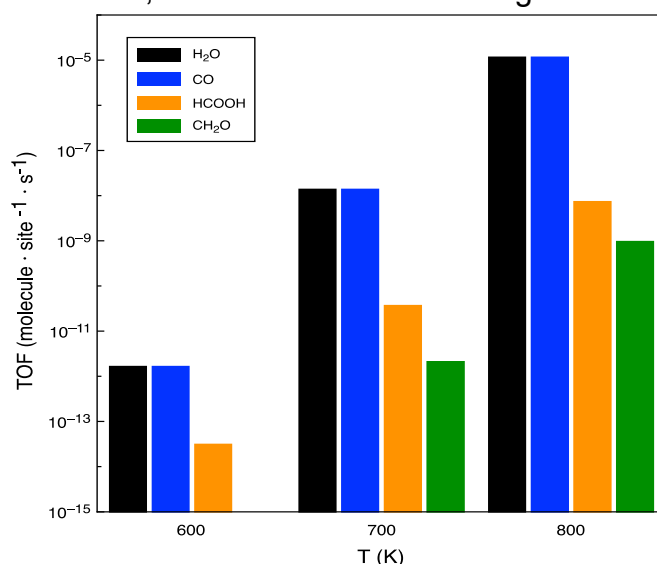
1. E. A. Althoff, L. Wang, L. Jiang, L. Giger, J. K. Lassila, Z. Wang, M. Smith, S. Hari, P. Kast, D. Herschlag, D. Hilvert and D. Baker, *Protein Science*, **2012**, *21*, 717–726.
2. R. Obexer, A. Godina, X. Garrabou, P. R. E. Mittl, D. Baker, A. D. Griffiths and D. Hilvert, *Nature Chem*, **2017**, *9*, 50–56.
3. A. Romero-Rivera, M. Garcia-Borràs and S. Osuna, *ACS Catal.*, **2017**, *7*, 8524.
4. D. De Raffe, S. Martí and V. Moliner, *ACS Catal.*, **2020**, *10*, 7871–7883.

## Estudi DFT i model microcinètic per a la hidrogenació de CO<sub>2</sub> amb Ru encapsulat en silicalita

Manuel Cánovas<sup>a\*</sup>, Pablo Gamallo<sup>a</sup>, Ramón Sayós<sup>a</sup>

*a, Universitat de Barcelona, Departament de Ciència de Materials i Química Física & Institut de Química Teòrica i Computacional (IQTUCUB), C. Martí i Franquès 1, 08028 Barcelona, Espanya  
manuelcanovas96@ub.edu\**

Els nivells crítics de CO<sub>2</sub> emesos en l'última dècada han portat als investigadors a trobar noves tècniques per reduir les emissions humanes a l'atmosfera. Una possibilitat és capturar el CO<sub>2</sub> emès just quan s'ha produït o, fins i tot, quan ja es a l'aire, fent servir diferents materials (e.g., zeolites, MOFs, líquids iònics, ...). Dintre de les diferents aplicacions per al CO<sub>2</sub> capturat, la conversió a combustibles lleugers com metà, metanol, àcid fòrmic, etc., és essencial per assegurar una desitjada economia circular. En els darrers anys, els catalitzadors single-atom (SAC) encapsulats dins zeolites s'han postulat com a bons candidats per a aquesta tasca, ja que presenten una alta selectivitat i activitat per la unitat mínima de catalitzador. En aquest estudi, s'ha proposat un mecanisme detallat compost per 47 reaccions elementals reversibles per a la hidrogenació del CO<sub>2</sub> amb Ru com a SAC encapsulats en silicalita (Ru<sub>1</sub>@S-1) [1]. S'han realitzat càlculs emprant la Teoria del Funcional Densitat amb el paquet VASP [2] i s'ha usat un Model Microcinètic amb el software MkMXXC [3] a diferents temperatures i pressions per avaluar la producció dels gasos formats. L'anàlisi dels resultats mostra una producció majoritària de CO<sub>(g)</sub> i H<sub>2</sub>O<sub>(g)</sub>, observant així que la reacció principal és la reacció de desplaçament de l'aigua. També s'observa la formació d'àcid fòrmic i formaldehid, tal i com es mostra a la figura 1.



**Figura 1.-** Freqüències d'ocurrència (TOFs) de les produccions d'H<sub>2</sub>O<sub>(g)</sub>, CO<sub>(g)</sub>, HCOOH<sub>(g)</sub> i CH<sub>2</sub>O<sub>(g)</sub> per a temperatures dins el rang 600-800 K, per a 1 bar i amb una proporció molar de mescla inicial de H<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> de 4:1.

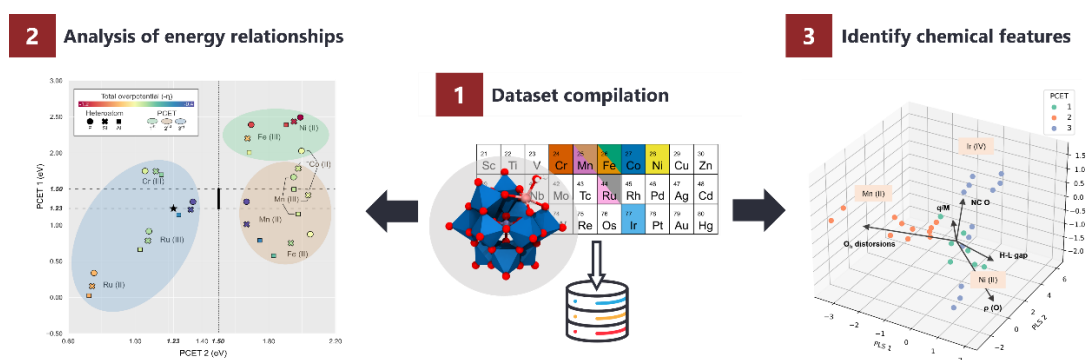
- [1] M. Cánovas; A. Gracia; R. Sayós; P. Gamallo; *J. Phys. Chem. C* **2024**, 128, 16551–16562.  
 [2] G. Kresse; J. Furthmüller; *Phys. Rev. B: Condens. Matter* **1996**, 54, 11169-11186.  
 [3] I.A.W. Filot; **2018**, *Introduction to microkinetic modeling*, Technische Universiteit Eindhoven.

## Enginyeria d'atributs en l'oxidació de l'aigua catalitzada per POMs

Mario Villares<sup>a</sup>, Jorge J. Carbó<sup>a</sup>, Maria Besora<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Departament de Química Física i Inorgànica, Universitat Rovira i Virgili,  
 Marcel·lí Domingo 1, 43007 Tarragona, Spain.  
 mario.villares@urv.cat

Els catalitzadors per a l'oxidació de l'aigua (Water Oxidation Catalysts, WOCs) són essencials per a aplicacions d'energia renovable, com l'electròlisi de l'aigua i la fotosíntesi artificial. Els polioxometal·lats (POMs), constituïts per metalls com V, Nb, Ta, Mo i W, són versàtils i poden substituir alguns àtoms per metalls de transició, modelant així les seves propietats catalítiques. Els POMs amb metalls de transició (TM-POMs) han destacat com a catalitzadors en la reacció d'evolució d'oxigen (OER). Lleugeres modificacions en els catalitzadors i en les condicions de reacció tenen un impacte en l'activitat [1]. Recentment, aproximacions computacionals han permès explorar l'espai químic i comprendre les relacions dins del cicle OER per als TM-POMs de tipus sandvitx [2].



**Figura 1.** (1) Representació esquemàtica de la creació de 90 TM-POMs (2) *Volcano plot* que mostra la relació entre el sobrepotencial i el descriptor OER. (3) Biplot dels descriptors projectats en l'espai químic determinat per la PLS.

En aquest treball, presentem una aproximació *in silico* per als TM-POMs de tipus Keggin, on s'ha construït un conjunt de dades combinant diferents metalls de transició ( $M = \text{Co}^{\text{II}}, \text{Fe}^{\text{II}}, \text{Fe}^{\text{III}}, \text{Cr}^{\text{III}}, \text{Mn}^{\text{II}}, \text{Mn}^{\text{III}}, \text{Ru}^{\text{II}}, \text{Ru}^{\text{III}}, \text{Ni}^{\text{II}}, \text{Ir}^{\text{IV}}$ ) i els heteroàtoms ( $X = \text{P}^{5+}, \text{Si}^{4+}, \text{Al}^{3+}$ ). S'han estudiat les espècies  $S_0$ ,  $S_1$  i  $S_2$ , donant lloc a 90 configuracions diferents. Amb les dades DFT obtingudes, s'han derivat relacions d'escala lineals (*Linear Scaling Relationships*, LSR) i s'han identificat descriptors clau que representen les propietats dels catalitzadors. Models estadístics com el mètode de Mínims Quadrats Parcial (Partial Least Squares, PLS) han permès predir amb precisió els sobrepotencials i determinar els factors clau en l'activitat.

[1] S. J. Folkman, J. Soriano-Lopez, J. R. Galán-Mascarós, R. G. Finke. *J. Am. Chem. Soc.*, **2018**, *140*, 24910-24916.

[2] M. J. Craig, R. Barda-Chatain, M. García-Melchor. *Journal of Catalysis.*, **2021**, *393*, 202-206.

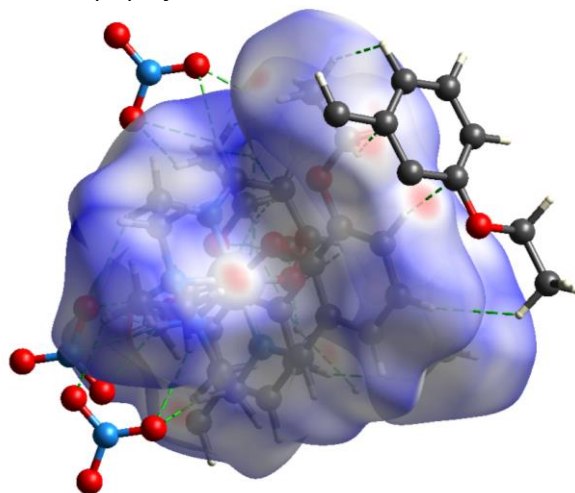
## Anàlisi computacional de la propagació en la interfície en un material commutable cooperatiu de creuament de spin de Fe(III)

David Carvalho,<sup>a</sup> Francesc Viñes,<sup>a</sup> Adrià Gil<sup>b</sup>

*a, Universitat de Barcelona, Departament de Ciència de Materials i Química Física & Institut de Química Teòrica i Computacional (IQTUCUB), Barcelona, Spain.*

*b, Universitat de Lleida, Departament de Química, Física i Ciències Ambientals i del Sòl, ETSEA – Escola Tècnica Superior d'Enginyeria Agrària, Lleida, Spain.  
 davidndrio@gmail.com*

In this study, we report the observation of the interface propagation between low-spin (LS) and high-spin (HS) states in a Fe(III) spin-crossover (SCO) material, specifically in the compound  $[\text{Fe}(\text{3-EtO-salEen})_2]\text{NO}_3$ . This phenomenon has been extensively studied and documented in Fe(II) systems, but remains limited in Fe(III) complexes.[1] Therein, this work contributes to expanding the possibilities for both the study and potential application of Fe(III) SCO materials. This phenomenon initiates at specific sites (surfaces or defects) and propagates throughout the material via intermolecular interactions. Therefore, understanding this behavior is fundamental for the comprehension of the cooperativity and interface dynamics of this process. For this purpose, we conducted computational studies at Density Functional Theory (DFT) level including Hirshfeld surface analysis, with a geometry optimization using the meta-GGA functional Tao-Perdew-Staroverov-Scuseria (TPSS) [2] with the Grimme's D3 correction.[3] This analysis showed a major dominance of  $\text{O}\cdots\text{H}$  intermolecular interactions on both states, with a slight decrease in its contribution for the HS state, compensated by an increase in residual  $\text{C}\cdots\text{O}$  and  $\text{N}\cdots\text{H}$  interactions. Also, the determined volume change between states was only 5.0 %, which is consistent with the high-speed interface propagation experimentally reported. This study offers important insights on how lattice parameters and intermolecular interactions govern spin-crossover dynamics in Fe(III) systems.



1. P. Koningsbruggen, Y. Maeda, H. Oshio. *Top. Curr. Chem.* **2004**, 233, 259-324.
2. J. Tao, J. Perdew *et al.* *Phys. Rev. Lett.* **2003**, 91, 146401.
3. Grimme, J. Antony, S. Ehrlich, H. Krieg, *J. Chem. Phys.* **2010**, 132, 154104.

# Pòsters

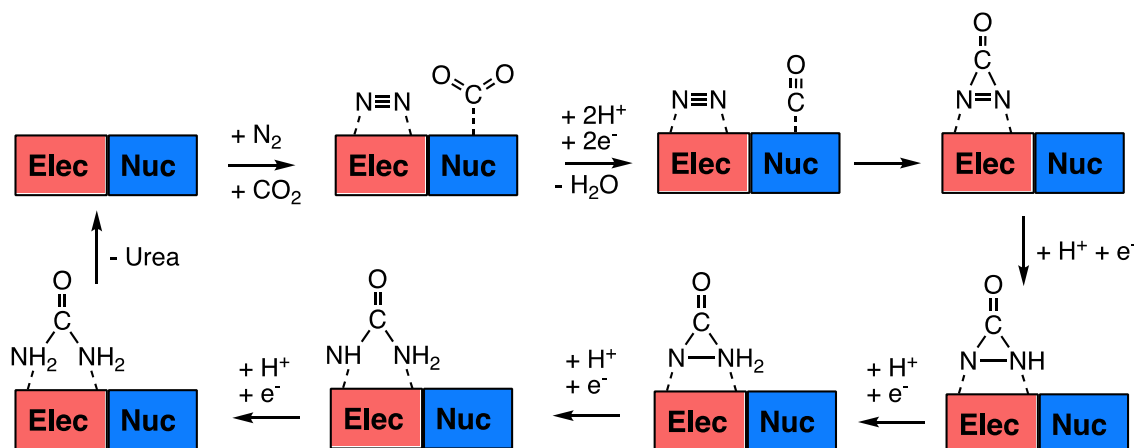
## Estudi Computacional de la Síntesi Electroquímica d'Urea Catalitzada per PdCu

Yanis Abid Charef, Luis Rodríguez-Santiago, Mariona Sodupe, Xavier Solans-Monfort

Universitat Autònoma Barcelona, Departament de Química, Barcelona, Espanya.

La urea es pot sintetitzar mitjançant una correducció electroquímica del CO<sub>2</sub> i de l'N<sub>2</sub> capturats de l'aire. Aquest procés requereix la presència d'un electrocatalitzador. Entre els materials proposats a la literatura, aquest treball se centre amb el PdCu com a catalitzador amb la finalitat de determinar computacionalment el mecanisme de la reacció. A més s'han avaluat els efectes aïllats dels metalls Pd i Cu. S'han considerat 3 superfícies representatives del PdCu tenint en compte tant la composició del material com la morfologia superficial: PdCu (110) - (111) - (112). Els resultats obtinguts mostren que el pas clau del mecanisme de reacció per a la formació d'urea és la formació del precursor NCON mitjançant la reacció entre N<sub>2</sub> i CO adsorbits.

De la mateixa manera, també s'han explorat reaccions competitives que podrien interferir o ajudar amb la reacció principal. En concret, la reducció de N<sub>2</sub> que condueix a la formació d'amoníac per a la qual el pas clau és la hidrogenació inicial de N<sub>2</sub> adsorbit.



**Figura 1.** Mecanisme proposat per la síntesi d'urea per electroreducció simultània de CO<sub>2</sub> i N<sub>2</sub>.

Per a les tres superfícies, tant la hidrogenació inicial com la formació del precursor NCON són termodinàmicament desfavorables amb energies que varien d'1 eV a 2,5 eV. Per tant, caldria un potencial de 0,9 a 1,1 V per procedir. Per tant, PdCu no és un bon candidat per a la síntesi d'urea.



## Envers al mecanisme d'estabilització dels adhesius moleculars en complexos proteïna-proteïna.

Patricia Blanco Gabella<sup>a,b</sup>, Varbina Ivanova<sup>a,b</sup>, Álvaro Serrano Morras<sup>a,c</sup>,  
Jordi Juárez Jiménez<sup>a,b</sup>

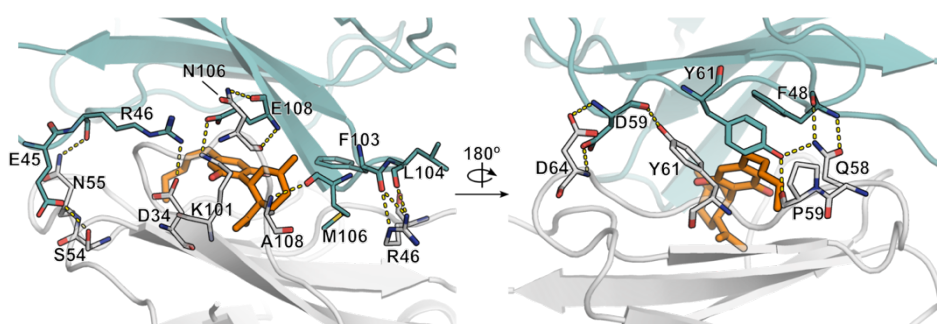
*a, Universitat de Barcelona, Departament de Farmàcia i Tecnologia Farmacèutica, i Físicoc Química, Barcelona, Espanya.*

*b, Universitat de Barcelona, Institut de Química Teòrica i Computacional, Barcelona, Espanya.*

*c, Universitat de Barcelona, Institut de Biomedicina, Barcelona, Espanya.*

Els adhesius moleculars són petites molècules orgàniques capaces d'estabilitzar interaccions proteïna-proteïna. Aquests compostos són utilitzats habitualment pels organismes vius per regular les cascades de senyalització i modular les seves funcions cel·lulars. Algunes d'aquestes molècules, com la lenalidomida, la ciclosporina A o el paclitaxel, fins i tot han esdevingut fàrmacs amb activitats immunomoduladores i antitumorals. Cal destacar, però, que la utilització d'aquests fàrmacs en la pràctica clínica gairebé sempre ha precedit, en ocasions per dècades, la comprensió del seu mecanisme d'acció real i el desenvolupament d'adhesius moleculars terapèutics massa sovint depèn de la sort i d'aproximacions de prova i error. D'aquesta manera, és necessari entendre els processos moleculars subjacents per poder desenvolupar noves eines que permetin el disseny racional de nous adhesius moleculars amb finalitats terapèutiques.

En aquest treball hem utilitzat mètodes de dinàmica molecular per donar una explicació físicoc Química de l'efecte d'estabilització promogut pels adhesius moleculars en quatre complexos representatius de diferents tipus d'adhesiu molecular. Partint del nostre treball anterior on vam estudiar el complex ternari CRL4<sup>CRBN</sup>-lenalidomida-CK1 $\alpha$ , demostrem que l'enfortiment d'interaccions polars és un mecanisme que, no sent generalitzable a tots els adhesius moleculars, s'estén més enllà dels complexos de CRL4<sup>CRBN</sup> amb els seus neo-substrats. Els nostres resultats obren una via per al desenvolupament de noves eines computacionals pel disseny d'adhesius moleculars.



1. Marina Miñarro-Lleonar, Andrea Bertran-Mostazo et. al. *J. Med. Chem.* **2023**, 66, 6037–6046

## Estudi mecanístic i cinètic de la reducció electroquímica de CO<sub>2</sub> amb un catalitzador de manganès(I) en condicions anhidres

Guillem Pey,<sup>ab</sup> Mattia Vettori,<sup>a</sup> Julio Lloret-Fillol<sup>ac</sup>, Josep Maria Luis<sup>b</sup>

*a, Institut de Català d'Investigació Química (ICIQ), Julio Lloret-Fillol Group, Tarragona, Espanya, [jlloret@iciq.es](mailto:jlloret@iciq.es)*

*b, Institut de Química Computacional i Catàlisi (IQCC), Departament de Química, Girona, Espanya, [josepm.luis@udg.edu](mailto:josepm.luis@udg.edu)*

*c, Institució Catalana de Recerca i Estudis Avançats (ICREA), Barcelona, Espanya.*

La concentració atmosfèrica de CO<sub>2</sub> és una quantitat que ha estat incrementant des del segle XIX degut a la constant consumició de combustibles fòssils. Aquest gas és notòriament eficient en absorbir radiació IR i reemetre-la a la superfície terrestre, contribuint a l'escalfament global.

Tot i això, el CO<sub>2</sub> es pot utilitzar per a la síntesi de combustibles i productes d'interès afegit. La reducció electroquímica del CO<sub>2</sub> és un marc teòric profundament estudiat que permet treballar en condicions suaus. Idealment s'hauria de poder treballar en condicions aquoses però la reducció de l'aigua a hidrogen esdevé un procés competitiu que afecta a la reducció del CO<sub>2</sub> i, per conseqüència, es treballa en condicions anhidres.

El grup de Lloret-Fillol va desenvolupar l'any 2018 un catalitzador organometàl·lic de manganès(I) [Mn(bis-<sup>Me</sup>NHC)(CO)<sub>3</sub>Br] per a la reacció de reducció de CO<sub>2</sub> amb un TOF màxim de 2100 s<sup>-1</sup> en acetonitril anhidre,<sup>[1]</sup> mentre que en presència de [H<sub>2</sub>O]~0.5M s'arriba als 39400 s<sup>-1</sup>.<sup>[2]</sup>

L'objectiu principal d'aquest estudi consisteix en entendre com funciona el catalitzador a baixes concentracions de CO<sub>2</sub> en condicions anhidres. S'han realitzat càlculs DFT per a determinar el mecanisme pròtic i apròtic, i s'han portat a terme simulacions cinètiques amb COPASI<sup>[3]</sup> per racionalitzar els resultats experimentals. Aquests últims mostren que una de les reaccions catalítiques és de primer ordre respecte a la concentració de CO<sub>2</sub> per quasi tot el rang de concentracions estudiades. Per altra banda, per concentracions molt baixes les dades experimentals assenyalen un augment en l'ordre de reacció respecte [CO<sub>2</sub>] que podria ser causat per un canvi de mecanisme. En aquest estudi s'han realitzat simulacions amb COPASI per a determinar si aquest canvi en l'ordre de reacció és degut a un canvi de mecanisme pròtic al mecanisme apròtic.

1. F. Franco, M. F. Pinto, B. Royo, J. Lloret-Fillol, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **57**, 4603-4606.
2. S. Fernández, F. Franco, M. Martínez, S. Friães, B. Royo, J.M. Luis, J. Lloret-Fillol, *ACS Catalysis*, **13** (15), 10375-10385
3. S. Hoops, S. Sahle, R. Gauges, C. Lee, J. Pahle, N. Simus, M. Singhal, L. Xu, P. Mendes, U. Kummer, *Bioinformatics*, **22**, 3067-3074

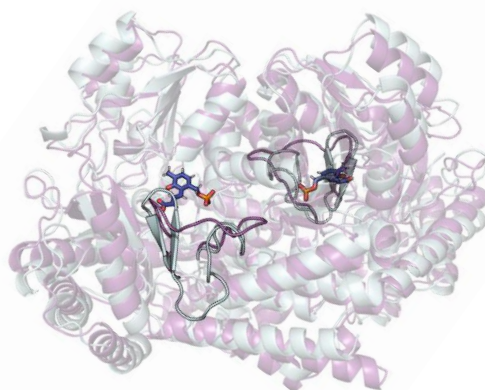
## Caracterització computacional de les L-Treonina Transaldolases per a la síntesis d'aminoàcids $\beta$ -hidroxilats

Esther Pruna,<sup>a</sup> Sílvia Osuna,<sup>a,b</sup>

*a, Institut de Química Computacional i Catàlisi, Departament de Química, Universitat de Girona, Parc R+I Univ. Girona, Ed. Monturiol, c/ Emili Grahit 91, 17003*

*b, ICREA, Pg. Lluís Companys 23, 08010 Barcelona, Spain*

La catàlisi enzimàtica és el procés que governa la majoria de les reaccions biològiques, ja que redueix la barrera energètica i proporciona una alta eficiència i selectivitat. A més, els enzims són biodegradables i poden operar a temperatura i pressió ambientals, atributs que els fan especialment atractius per a la indústria. Tot i això, perquè puguin utilitzar-se a escala industrial, sovint cal modificar-los per augmentar la seva eficiència catalítica o ampliar la seva activitat a substrats no naturals. Aquest projecte se centra en l'estudi de les L-treonina transaldolases (LTTAs), una classe d'enzims poc caracteritzada dependents del piridoxal-5'-fosfat (PLP) i que participa en la biosíntesi de diversos aminoàcids  $\beta$ -hidroxilats. Aquests aminoàcids tenen un gran potencial en la síntesi farmacèutica, ja que són precursors de fàrmacs de molècula petita, d'antibiòtics de  $\beta$ -lactona i serveixen com a blocs de construcció de polipèptids. L'ObiH és la LTTA més caracteritzada i catalitza la reacció amb el p-nitrofenilacetaldehid en la ruta de biosíntesi de l'obafurina, un inhibidor de l'aminoacil-tRNA sintetasa  $\beta$ -lactona.[1] Tot i això, el seu mecanisme de reacció continua, en gran mesura, inexplorat. A més, presenta una afinitat limitada per la L-treonina i un rang restringit de substrats amb els quals pot reaccionar. Tanmateix, s'han identificat noves LTTAs que podrien superar algunes d'aquestes limitacions. Entre les més prometedores es troba la pbTTA, que mostra una afinitat millorada per la L-Treonina, una activitat catalítica superior a la reportada, una diastereoselectivitat comparable a la d'ObiH i un rang de possibles substrats més ampli.[2] En aquest context, s'utilitzaran mètodes computacionals, que inclouen dinàmica molecular, mètodes semi empírics o mètodes de mecànica quàntica, per caracteritzar el procés catalític de la pbTTA i establir de forma preliminar els trets diferencials que podrien explicar les diferències observades en l'activitat enzimàtica.



1. P. Kumar, A. Meza, J. M. Ellis, G. A. Carlson, C. A. Bingman, A. R. Buller, *ACS Chem. Biol.* **2021**, *16*, 86-95.
2. M. A. Jones, N. D. Butler, S. R. Anderson et al. *Commun Biol* **2023**, *6*, 929.

## Descobrint els factors estructurals que module la selectivitat per als sterols del domini N-terminal del transportador NPC1L1

Aitor Valdivia,<sup>a,b</sup> F. Javier Luque,<sup>a,b,c</sup> Salomé Llabrés,<sup>a,b</sup>

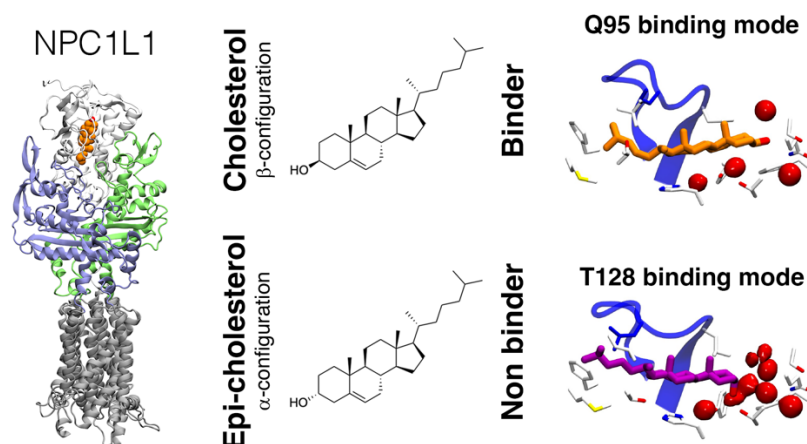
*a, Universitat de Barcelona, Departament de Nutrició, Ciències de l'Alimentació i gastronomia, Santa Coloma de Gramenet, Espanya.*

*b, Institut de Química Teòrica i Computacional (IQTC), Barcelona, Espanya.*

*c, Institut de Biomedicina (IBUB), Barcelona, Espanya.  
salome.llabres@ub.edu*

El colesterol és un component essencial de les membranes cel·lulars dels mamífers i un precursor clau de diverses biomolècules com les hormones esteroides, la vitamina D i les sals biliars. L'homeòstasi del colesterol està regulada de manera estricta a través de tres processos: la biosíntesi endògena, l'absorció dietètica a l'intestí i l'excreció i reabsorció biliar neta. El principal importador de colesterol a l'intestí és la proteïna Niemann Pick C1-Like 1 (NPC1L1). El seu domini N-terminal (NTD) uneix molècules d'esterols i les transfereix als dominis interns de NPC1L1. El domini NTD actua com un filtre selectiu per als esterols provinents de la dieta, però les característiques estructurals que confereixen selectivitat encara no es coneixen.

En aquesta comunicació es detallen els resultats de simulacions de dinàmica molecular, càlculs d'energia lliure i simulacions de metadinàmica per identificar el mode d'unió de diferents esterols i estimar-ne l'afinitat amb el domini NTD del transportador NPC1L1. [1] Hem identificat dos factors crítics per a la selectivitat de substrats del transportador NPC1L1: la configuració de la posició C3 del nucli d'esterol i la presència d'una molècula d'aigua estructural que estabilitza el mode d'unió d'aquestes molècules orgàniques. En conjunt, aquest treball contribueix i ajuda elucidar el mecanisme implicat en l'absorció de lípids de la dieta.



1. A. Valdivia, et al, *J. Chem. Inf. Model.* **2024**, *64*, 189-204.

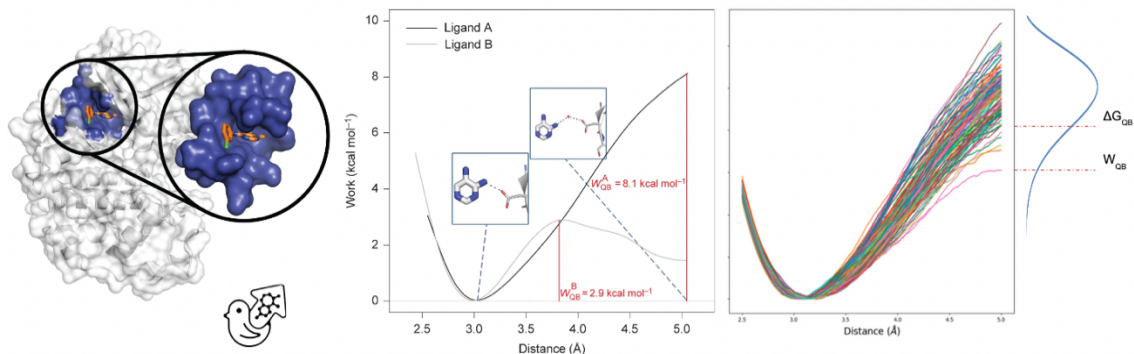
## OpenDUck, una llibreria en codi obert per al desenvolupament d'aplicacions de dinàmica molecular dirigida

Álvaro Serrano-Morrás<sup>a</sup>, Simon Bray<sup>b</sup>, Jordi Juárez-Jiménez<sup>a</sup>, Xavier Barril<sup>a</sup>

*a, Universitat de Barcelona, Secció departamental de Fisicoquímica, Facultat de Farmàcia i Ciències de la Alimentació, Barcelona, Espanya*  
*b, Gain Therapeutics, Bethesda, Maryland*

**Dynamic Undocking (DUck)** és una aplicació específica de la dinàmica molecular guiada (SMD) en què s'avalua el treball necessari per trencar l'enllaç d'hidrogen principal ( $W_{QB}$ ) d'un complex proteïna-lligand. Aquesta mesura representa la magnitud de la primera barrera de dissociació i, per tant, l'estabilitat estructural del complex. DUck ha demostrat bons resultats com a pas de filtratge posterior al docking, en la determinació de modes d'unió i en l'estabilitat de complexos ternaris proteïna-proteïna amb "molecular glues". No obstant això, depèn de diversos programes amb llicència i la seva implementació actual és molt rígida, cosa que dificulta el desenvolupament de noves aplicacions.

Per aquest motiu, hem desenvolupat **OpenDUck**, una implementació de codi obert en forma de biblioteca de Python basada en DUck, destinada a facilitar la creació de canals de treball SMD a **AMBER** i **OpenMM**. Hem validat OpenDUck utilitzant un conjunt de dades molt divers de complexos proteïna-lligand i una àmplia gamma de paràmetres de simulació i camps de forces. A més, exemplifiquem la facilitat d'ús de la biblioteca i la seva flexibilitat amb dues noves implementacions SMD. La primera, avaluant l'estabilitat estructural de xarxes d'aigua en complexos proteïna-lligand i la segona, fent ús del teorema de fluctuació de Crooks per obtenir el energies lliures ( $\Delta G_{QB}$ ) convergides de manera més eficient.



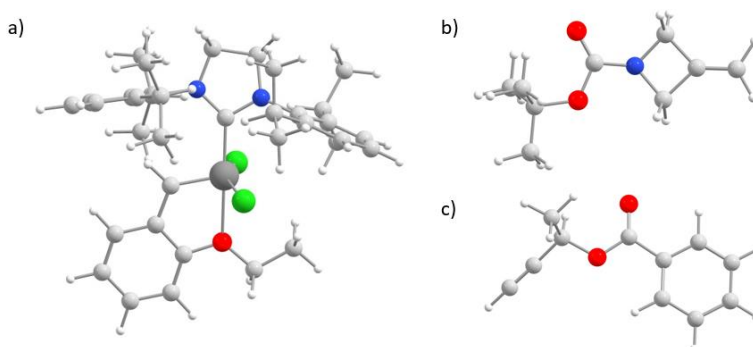
## La tensió anular afavoreix la síntesi atom-economy de 1,3-diens substituïts per metàtesi d'enins creuada

Didac-Armand Fenoll,<sup>a</sup> Xavier Solans-Monfort,<sup>a</sup> Laurence N. Rohde,<sup>b</sup> Steven T. Diver,<sup>b</sup>

*a, Universitat Autònoma de Barcelona, Departament de Química, 08191 Bellaterra, Espanya.*

*b, University at Buffalo, Department of Chemistry, 14260 Buffalo, USA.  
 didacarmand.fenoll@uab.cat*

En els últims seixanta anys, la metàtesi d'olefines ha experimentat avenços clau quant a l'activitat, selectivitat i estabilitat dels catalitzadors. Conjuntament, el treball experimental i teòric ha proporcionat notables desenvolupaments en la metàtesi creuada o de tancament/obertura d'anell. La metàtesi d'enins és particularment interessant, ja que en la recombinació d'enllaços dobles i triples trobem una eina sintètica versàtil per l'obtenció de 1,3-diens conjugats. Recentment, el Prof. Steven Diver i col·laboradors han obtingut 1,3-diens altament substituïts mitjançant ciclobutà-metilidens tensionats amb alquins terminals. La comprensió del paper de la tensió anular és encara insuficient. En aquesta contribució, presentem les simulacions DFT realitzades en col·laboració amb el Prof. Diver per tal d'entendre la importància de la tensió anular en la síntesi descrita. Hem estudiat el cicle catalític complet de la metàtesi d'enins creuada: activació del precursor, propagació i interconversió de l'espècie activa. A la Figura 1 es mostra el ciclobutà-metilidè escollit com a representatiu, així com l'alquè i l'alquí terminal emprats.



**Fig. 1** Estructures optimitzades del precursor (a), l'alquè (b) i l'alquí (c).

Els nostres resultats mostren la preferència pel mecanisme *alkene-first* sense competició de la metàtesi creuada d'alquè. Tot i que el rang d'energia de Gibbs observat ( $26 \text{ kcal mol}^{-1}$ ) és consistent amb les condicions de reacció (temperatura ambient), la reacció amb l'alquè acíclic és energèticament més costosa ( $31 \text{ kcal mol}^{-1}$ ). Atribuïm aquesta diferència a la desestabilització de l'intermedi ciclobutà-metilidè, produïda per dos factors. Per una banda, l'angle menor del substrat tensionat afavoreix la donació d'electrons del carbé al metall, reforçant l'enllaç metall-carbé. Per l'altra, la tensió anular redueix el volum estèric del carbé, disminuint així l'impediment estèric entre el carbé i els altres lligands.

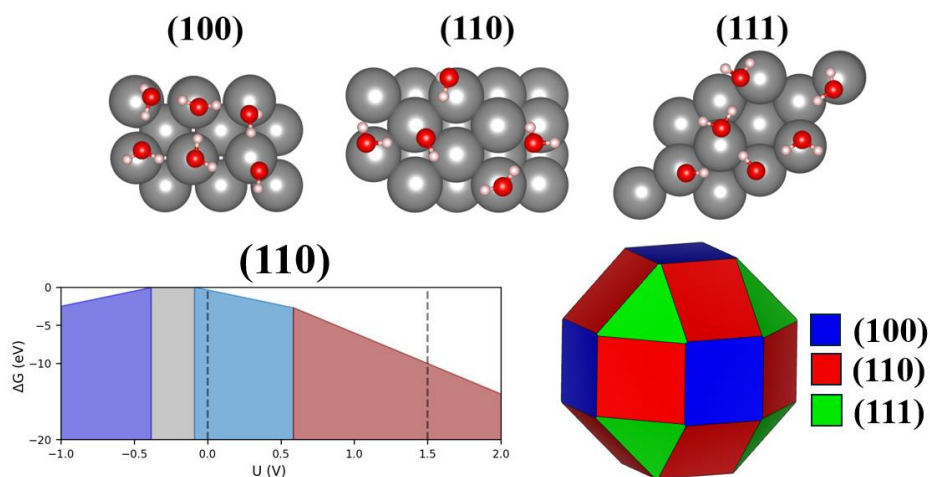
1. Nunez-Zarur, F.; Solans-Monfort, X.; Rodríguez-Santiago, L.; Pleixats, R.; Sodupe, M. *Chem. Eur. J.* **2011**, *17*, 7506-7520.

## Perspectiva atòmica de la interfase Ferro-Aigua en diferents condicions electroquímiques

Adenilson Felipe Sousa-Silva,<sup>a</sup> Didac-Armand Fenoll,<sup>a</sup> Xavier Solans-Monfort,<sup>a</sup> Luis Rodríguez,<sup>a</sup> Mariona Soupe<sup>a</sup>

*a, Universitat Autònoma de Barcelona, Departament de Química, 08191 Bellaterra, Espanya.  
adenilson.felipe@uab.cat*

La implementació de l'electrocatalisi verda a gran escala requereix una optimització global de la raó cost-activitat. L'evaluació de nous materials, motivada per l'alt preu dels metalls nobles més actius, s'ha vist extremadament afavorida per la conjunció d'estudis experimentals i teòrics. Aquests últims proporcionen una visió atomística crucial per entendre els fenòmens que regulen el procés electrocatalític i, en última instància, la seva eficiència faradaica. Entre aquests fenòmens, la formació de la interfase aigua-elèctrode és clau. Més enllà de ser font d'espècies reactives com H<sup>\*</sup> i OH<sup>\*</sup>, l'aigua influeix en l'activitat a través de la configuració dels enllaços d'hidrogen a diferents cobertures de superfície o el seu estat d'oxidació a diferents pH i potencials externs. En aquesta contribució, mostrem els resultats de les simulacions DFT sobre l'adsorció d'aigua en les cares(100), (110) i (111) del Fe metàl·lic (estructura cúbic centrat a les cares), representades amb models de superfície periòdics. En el marc teòric de l'elèctrode computacional d'hidrogen, hem estudiat l'efecte electrònic i estructural de diferents cobertures d'aigua.



Constatem l'existència d'un compromís entre la quimisorció d'aigües sobre la superfície, favorable en cobertura baixa, i la formació de xarxes d'enllaç d'hidrogen entre molècules en fisorció a major concentració superficial. Hem calculat els diagrames d'estabilitat de l'aigua en medi àcid (pH=0) per a diferents potencials, diferenciant així el comportament de les tres cares sota potencials oxidatius/reductius. Alhora, mostrem el canvi en les contribucions de cada faceta sense i amb cobertura d'aigua a partir de construccions de Wulff.

1. Z.W., She, J., Kibsgaard, *Science* **2017**, 355, 146-151.

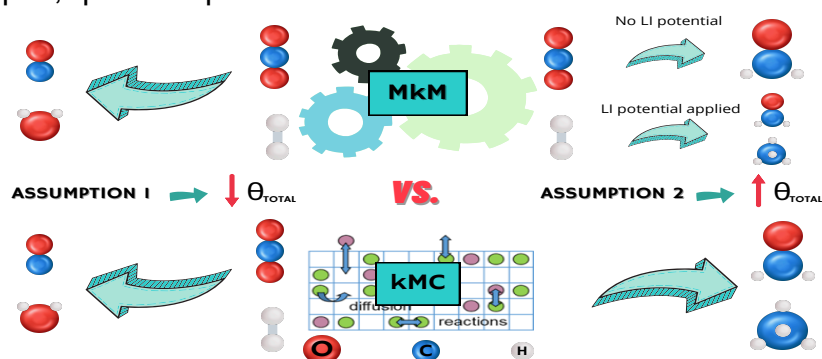
## Estudi cinètic comparatiu de la hidrogenació de CO<sub>2</sub>(g) sobre Ni(111): Model microcinètic vs. simulacions cinètiques de Monte Carlo

Alejandro Gracia<sup>1\*</sup>, Pablo Lozano-Reis<sup>1</sup>, Pablo Gamallo<sup>1</sup>, Fermín Huarte<sup>1</sup>, Ramón Sayós<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Departament de Ciència de Materials i Química Física & Institut de Química Teòrica i Computacional (IQTCUB), Universitat de Barcelona, C. Martí i Franquès 1, 08028 Barcelona, Spain

[alejandro.gracia@ub.edu](mailto:alejandro.gracia@ub.edu)

La influència de la química computacional en el disseny de catalitzadors exigeix una evolució constant dels mètodes que desxifrin la connexió entre fenòmens microscòpics i propietats macroscòpiques. Mentre que la Teoria del Funcional de la Densitat (DFT) aborda el món microscòpic a nivell energètic, les tècniques cinètiques són essencials per estudiar l'evolució temporal dels sistemes catalítics, que sovint inclouen xarxes de reaccions complexes. Els investigadors es concentren principalment en dos mètodes cinètics: el model microcinètic (MkM) [1] i les simulacions cinètiques de Monte Carlo (kMC) [2]. Aquest estudi pretén examinar la complexa reacció d'hidrogenació de CO<sub>2</sub>(g) sobre la superfície de Ni(111) en diferents entorns catalítics, utilitzant tant simulacions kMC com MkM. Partint d'una caracterització energètica comuna [3], compararem meticulosament les prediccions dels dos mètodes cinètics. Per això, analitzarem paràmetres macroscòpics com ara freqüències de producció (TOFs) i recobriments superficials, mentre analitzem els mecanismes de reacció per identificar discrepàncies entre les dues metodologies. Les nostres simulacions indiquen que el mètode MkM és convenient per a sistemes amb poc recobriment global gràcies als seus resultats comparables als del mètode kMC, amb l'avantatge d'un cost computacional significativament menor. D'altra banda, per a una comprensió més profunda del comportament espacial, sobretot en sistemes amb alts recobriments superficials on les interaccions laterals entre adsorbats són considerables, les simulacions kMC espacialment sensibles són preferibles. Aquests resultats, aplicables a diversos sistemes catalítics, pretenen ajudar els químics teòrics a seleccionar l'enfocament cinètic més adequat, que serà presentat i discutit amb detall a la Conferència.



**Figura 1:** Resum gràfic que il·lustra les principals conclusions de la comparació entre MkM i kMC en la hidrogenació de CO<sub>2</sub>(g) sobre Ni(111) a T = 673K i p=1 bar.

[1] I. A. W. Filot, R. A. van Santen, E. J. M. Hensen, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2014**, 53 (47), 12746-12750.

[2] M. Stamatakis.; D.G. Vlachos, *J. Chem. Phys.* **2011**, 13, 214115.

[3] P. Lozano-Reis, H. Prats, P. Gamallo, F. Illas, R. Sayós; *ACS Catal.* **2020**, 10, 8077-8089.



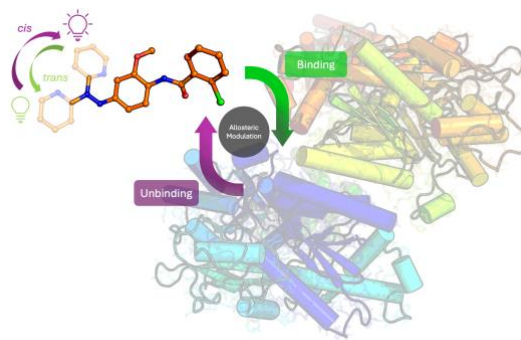
## Mecanisme d'evolució temporal de la regulació al·lostèrica fotofarmacològica del receptor metabotròpic de glutamat 5

Raúl Lago-Saavedra,<sup>a</sup> Marc Garcia-Borràs,<sup>a</sup> Ferran Feixas<sup>a</sup>

*a, Universitat de Girona, Institut de Química Computacional i Catalisi i Departament de Química, Girona, Espanya.  
raul.lago@udg.edu*

Les biomolècules modulen la seva funció i dinamisme en resposta als canvis ambientals, com ara la unió amb altres molècules, la catàlisi, les interaccions amb la llum o la transferència d'electrons. Comprendre l'evolució temporal dels processos biomoleculars en resposta a estímuls externs proporciona informació essencial sobre els seus mecanismes funcionals, un aspecte rellevant per al disseny de fàrmacs i l'enginyeria biomolecular. La modelització computacional ha emergit com un microscopi computacional capaç de captar detalls estructurals, dinàmics i mecanístics amb resolució atòmica. Tot i això, els protocols de simulació de dinàmica molecular (MD) basats en camps de força clàssics presenten limitacions pel que fa al mostreig suficient de les conformacions i una certa rigidesa per adaptar-se a les pertorbacions. Per aquest motiu, els efectes de les pertorbacions, com ara el procés d'unió, encara són poc explorats en molts sistemes.

En aquest treball, ens proposem estudiar el mecanisme d'evolució temporal referent a l'activació i desactivació al·lostèrica fotofarmacològica del receptor metabotròpic del glutamat 5 (mGluR5). L'alloswitch-1 (fenilazopiridina) permet controlar de manera dependent de la llum l'activació al·lostèrica del mGluR5 mitjançant la isomerització del seu grup azo. [1] Aquesta propietat el converteix en un excel·lent candidat per estudiar la relació entre la (des)unió induïda per la llum del lligand cis-trans alloswitch-1 i la regulació al·lostèrica del mGluR5. Per investigar aquest mecanisme, hem aplicat un protocol computacional que integra simulacions MD amb tècniques de mostreig millorades. Atès que l'alloswitch-1 experimenta isomerització induïda per la llum, hem realitzat una parametrització acurada del camp de força d'aquesta molècula. Utilitzant simulacions de MD accelerada i metadinàmica, descrivim la dinàmica d'unió i desunió del trans- i cis-alloswitch-1 amb el mGluR5, aportant informació clau sobre els seus efectes fotofarmacològics.



1. X. Gómez-Santacana, S. Pittolo, X. Rovira, M. Lopez, C. Zussy, J. Dalton, F. Adèle, J. Chris, P. Jean-Philippe, C. Francisco, G. Cyril, G. Jesús, G. Pau, A. Llebaria, *ACS Cent. Sci.* **2017**, *3*, 81-91.

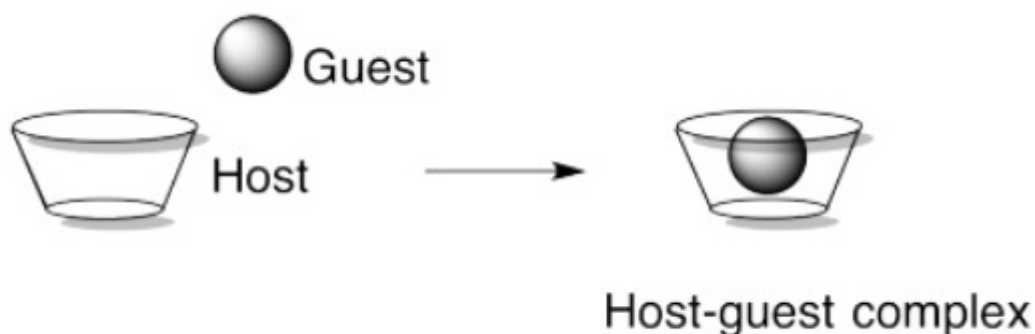
## Anàlisi Computacional del Comportament de Caixes Metal·lorgàniques en Dissolució

Irina Cuesta, Mercè Alemany-Chavarria, Gregori Ujaque

*Universitat Autònoma de Barcelona, Departament de Química, 08193, Cerdanyola del Vallès, Catalunya*

L'estudi de sistemes supramoleculars amb capacitat per encapsular molècules, coneguts com a sistemes amfitrió-hoste, ha experimentat un notable augment d'interès en els darrers anys. En aquest treball es presenta una anàlisi computacional del comportament amfitrió-hoste de caixes metal·lorgàniques que presenten una estructura quadrada o rectangular amb metalls (Pd or Ir) als vèrtex de la metal·locaixa.

Per dur a terme l'anàlisi computacional s'han utilitzat mètodes de càlcul basats en la mecànica quàntica (MQ) per derivar els paràmetres de camp de força necessaris mitjançant la metodologia MCPB. Posteriorment s'han realitzat simulacions de dinàmica molecular per veure el comportament d'aquests sistemes en dissolució. S'ha analitzat el comportament de les metal·locaixes soles, amb presència de contraions i amb diverses molècules que actuen com a hostes.



1. J.L. Atwood, Ed. *Comprehensive Supramolecular Chemistry II*. Elsevier Ltd. **2017**.
2. P.W.N.M. van Leeuwen, M. Raynal, Eds. *Supramolecular Catalysis. New Directions and Developments*; Wiley **2022**.

## Avaluant la idoneïtat de dissenyar antivirals en un lloc d'unió atípic de l'hemaglutinina

Ilenia Lupinu,<sup>a,b</sup> Aitor Valdivia,<sup>b</sup> Francisco Javier Luque.<sup>b</sup>

*a, University of Sassari, Dept. of Chemical, Physical, Mathematical and Natural Science, via Vienna 2, 07100, Sassari, Italy.*

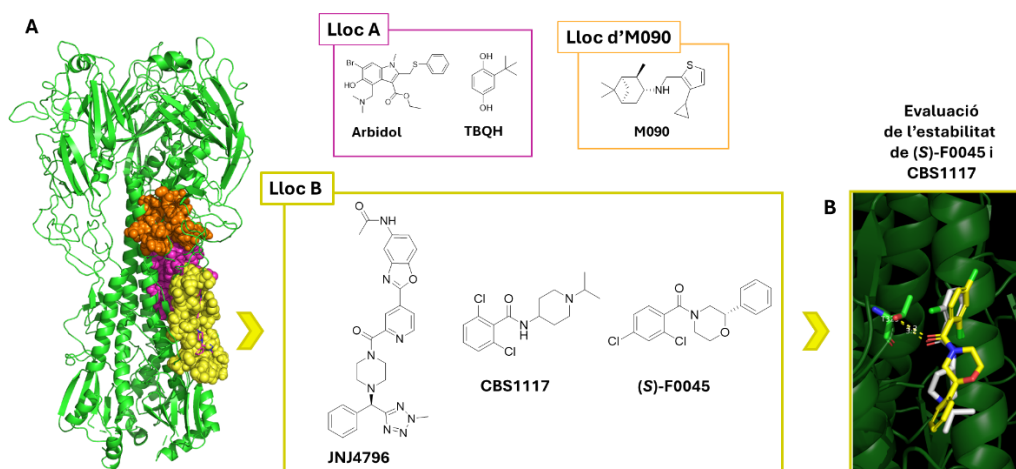
*b, Universitat de Barcelona, Dept. Nutrició, Ciències de l'Alimentació i Gastronomia, Institut de Química Teòrica i Computacional i Institut de Biomedicina, 08921 Santa Coloma de Gramenet, Espanya.*

*i.lupinu@phd.uniss.it*

Hemaglutinina (HA) és una glicoproteïna trimèrica amb un paper clau sobre la infectivitat del virus de la grip. D'una banda, s'uneix als residus d'àcid siàlic presents en receptors de la cèl·lula hoste, iniciant la infecció. D'altra banda, l'acidificació a l'endosoma desencadena un canvi conformacional en HA, alliberant el pèptid de fusió (FP) que facilita la fusió entre les membranes virals i hoste. A causa del seu paper clau en el procés infectiu, hi ha un interès creixent en identificar antivirals que actuïn sobre HA.

L'anàlisi de les estructures de raigs X revela dos llocs d'unió primaris a la regió de la tija: el lloc A, on s'uneixen compostos com TBHQ i arbidol, i el lloc B, que és un solc on s'ha descrit la unió de lligands com (S)-F0045 i CBS1117 [1].

Donat que el lloc B no reuneix les característiques típiques per unir fàrmacs, hem realitzat un estudi *in silico* per avaluar l'estabilitat d'unió de (S)-F0045 i CBS1117 a partir de les estructures cristal·logràfiques (PDB ID: 6WCR; 6VMZ), i analitzar la seva capacitat per dissenyar nous compostos antivirals. Amb aquesta finalitat, s'han realitzat simulacions de dinàmica molecular per comparar l'estabilitat estructural del lloc d'unió en la proteïna *apo* (2  $\mu$ s), així com en els complexos amb (S)-F0045 i CBS1117. Finalment, s'han explotat aquestes resultats per analitzar el possible reconeixement i unió d'altres compostos amb activitat antiviral publicats a la literatura.



**Figure 1:** A) Llocs d'unió a l'HA: Lloc A (magenta); M090 (taronja), Lloc B (groc). B) Mode d'unió de (S)-F0045 i CBS1117 (PDB ID 6WCR, 6VMZ).

[1] Hermoso-Pinilla, F. J.; et al. *Explor. Drug Sci.* **2024**, *2*, 85–116.

## Activació del signe d'acoblament magnètic en compostos basats en BTBN mitjançant el mecanisme de polarització d'spin

Pau Franquesa,<sup>a</sup> Jordi Ribas-Ariño,<sup>a</sup> Raul Santiago,<sup>a</sup> Mercè Deumal<sup>a</sup>

*a, Universitat de Barcelona, Departament de Ciència de Materials i Química Física i IQTCUB, Martí i Franquès 1, E-08028 Barcelona  
 pfranqui7@alumnes.ub.edu*

Els aparells spintrònics funcionen en base al moment de spin  $\alpha/\beta$  fent possible fenòmens com la magnetoresistència (MR). L'electrònica clàssica, en canvi, usa 0/1 indicant absència/presència de càrrega. És conegut que el diradical BTBN<sup>+</sup> (estructura de referència), amb densitat electrònica  $\pi$  spin-polaritzada i que conté el radical catió tetratiafulvalè (TTF<sup>+</sup>, donador D) i el nitronil nitròxid (NN, radical R), exhibeix MR. A més, l'electró que participa en les reaccions redox pertany a l'HOMO i no al SOMO (localitzats al TTF i NN, respectivament), estabilitzant així l'estat triplet. Aquest detall permet satisfer les condicions simultànies requerides per la MR: fort acoblament ferromagnètic (FM,  $J > 0$ ) d'spins al BTBN<sup>+</sup>, i conductivitat entre unitats de BTBN a través de l'apilament  $\pi$ .

S'ha investigat computacionalment la possibilitat d'incrementar el valor de l'acoblament intramolecular del BTBN<sup>+</sup> modificant *in-silico* els blocs D, R i C (connector entre D i R). Mitjançant el mecanisme de polarització d'spin i respectant paràmetres estructurals clau, es dissenyen propostes esperant obtenir millors diradicals que puguin ser usats en la síntesi de materials per aplicacions spintròniques. Els resultats s'interpreten en base a l'ordre d'enllaç de Widberg, NICS<sub>iso</sub>(1) i del mecanisme de polarització d'spin. D'entre les propostes (veure Fig. 1), les estructures que utilitzen l'hidroxi-etilè com a connector (E1, E2) o afegeixen el grup -OH a la unitat de TTF (E3) mostren molts bons resultats [1].

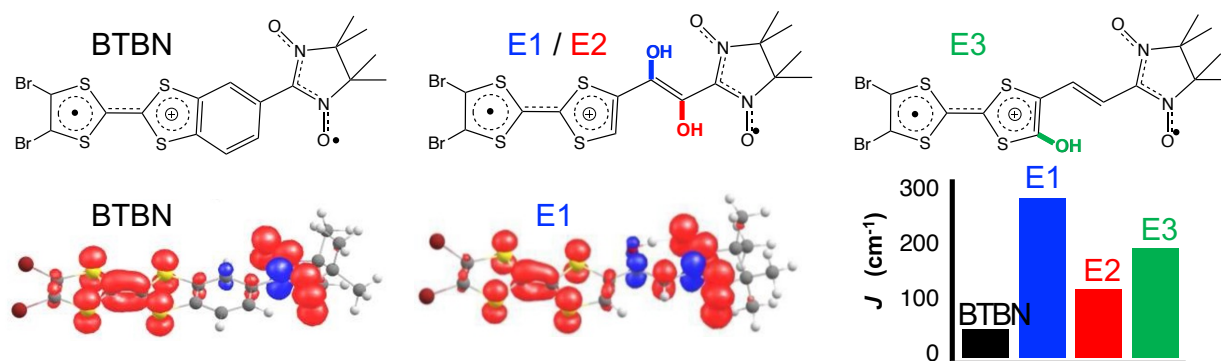


Figura 1: Estructures amb acoblament FM ( $J > J^{\text{BTBN}} = +56.4 \text{ cm}^{-1}$  en negre) resultants d'afegir un grup -OH a cada un dels C que ho permeten un cop modificat el connector. Comparació de la densitat d'spin entre BTBN i E1 que permet explicar el major valor de J d'E1 degut a l'increment de densitat d'spin a través de l'etilè.

1. P. Franquesa-Viñas, J. Ribas-Ariño, R. Santiago, M. Deumal, *Chem. Eur. J.* **2024**, *30*, e202400166.

## Cap a la comprensió del mecanisme de la magnetoluminescència en els diradicals basats en triarilmetil

**Fatemeh Mamusi**, Jordi Ribas-Ariño, Mercè Deumal, Maria Fumanal  
 Departament de Ciència de Materials i Química Física i IQTCUB, Facultat de Química, Universitat de Barcelona, Martí i Franquès 1, E-08028 Barcelona.  
[fatemeh.mamusi@ub.edu](mailto:fatemeh.mamusi@ub.edu)

L'interès pels radicals estables luminescents està augmentant a causa de les seves configuracions electròniques distintives i dels estats excitats perdurables. Les propietats emissives de les molècules de capa oberta es poden controlar mitjançant un disseny molecular adequat (1,2). La capacitat de controlar la luminescència mitjançant camps magnètics (és a dir, la magnetoluminescència) ha cridat recentment molta atenció perquè això obrirà vies per a noves tecnologies per a imatges òptiques d'alta resolució i la futura informàtica quàntica (3). En aquest treball es presentarà l'estudi del diradical format per dos radicals luminescents (2-cloro-3-piridil)bis(2,4,6-triclorofenil)-metil connectats per una 5,6,8,9-tetrahidro-7-fenildibenz[c,h]acridina (THDBA) (vegeu la figura 1 a continuació), el qual és el primer exemple d'un sistema basat en radicals orgànics en què la magnetoluminescència s'origina a nivell molecular (4), presumiblement originada en la formació d'estats excitats semblants a l'excímer. En aquest treball, presentem els resultats dels càlculs de TDDFT i mètodes de funció d'ona correlacionats realitzats per caracteritzar l'estructura electrònica de l'estat emissiu del diradical i dels seus blocs de construcció (monoradical i radical aïllat). Aquests estudis proporcionen informació valuosa sobre l'origen de la magnetoluminescència al diradical, contribuint a una millor comprensió i a establir antecedents sobre el tema.

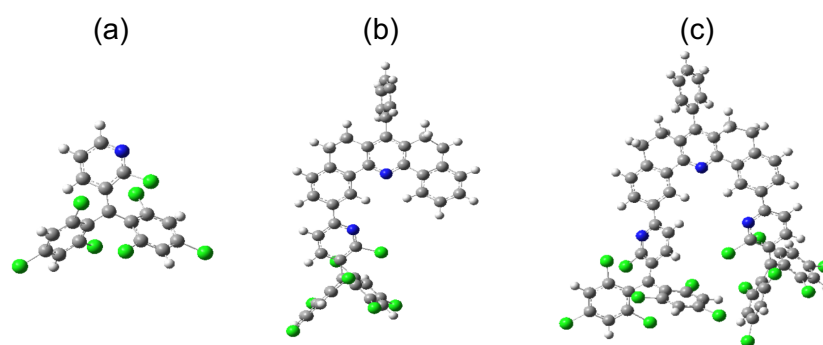


Figura 1: Derivats de diradicals basats en triarilmetil. (a) radical aïllat, (b) monoradical, (c) diradical.

- 1) P. Murto, H. Bronstein, *J. Mater. Chem. C*, **2022**, *10*, 7368–7403.
- 2) A. Mizuno, R. Matsuoka, T. Mibu, T. Kusamoto, *Chem. Rev.*, **2024**, *124*, 1034.
- 3) T. Kusamoto, S. Kimura, *Chem. Lett.*, **2021**, *50*, 1445–1459.
- 4) R. Matsuoka, S. Kimura, T. Miura, T. Ikoma, T. Kusamoto, *J. Am. Chem. Soc.*, **2023**, *145*, 13615–13622.

## Estudi computacional de líquids iònics basats en polioxometal·lats

Khaoula Merimi,<sup>a</sup> Xavier López,<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Universitat Rovira i Virgili, Departament de Química Física i Inorgànica,  
 Tarragona  
 khaoula.merimi@urv.cat

Els líquids iònics (ILs) són sals moleculars complexes amb propietats úniques, com un punt de fusió baix, baixa volatilitat i alta estabilitat tèrmica, que els fan ideals per a múltiples aplicacions, com a solvents alternatius i en tecnologies avançades.<sup>1</sup> En particular, els ILs basats en polioxometal·lats (POM-ILs) combinen la versatilitat estructural dels POMs amb la flexibilitat química dels ILs, oferint grans possibilitats en camps com la catàlisi i nanociència.<sup>2</sup> No obstant això, el seu estudi representa un repte experimental i computacional degut al seu comportament complex, caracteritzat per llargs temps de relaxació i alta anisotropia, que dificulten la determinació de les seves propietats.<sup>3</sup>

Aquí presentem un estudi computacional de diversos POM-ILs basat en simulacions de dinàmica molecular, combinant cations tetraalquilfosfoni i diverses estructures POM (Figura 1). L'objectiu és descriure i entendre el comportament d'aquests ILs, poc explorats. Per a això, hem adaptat un camp de força basat en AMBER, aplicant tècniques d'escalat de càrregues per considerar els efectes de transferència de càrrega i polarització, així com ajustant els paràmetres no enllaçants del potencial de Lennard-Jones.

Els resultats mostren com el tractament de les interaccions electrostàtiques i de van der Waals són clau per a determinar correctament les propietats dinàmiques dels POM-ILs. També observem com el seu comportament es diferencia del propi en ILs convencionals. Aquest treball representa un primer pas cap a la comprensió teòrica d'aquests materials, amb implicacions per a futurs estudis i aplicacions.

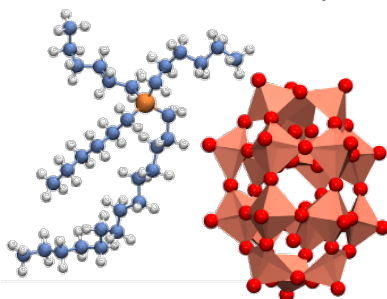


Figura 1. Representació dels ions per al Sistema POL-ILs estudiat  $(P_{6,6,6,14})_6^+ [PMO_{18}O_{62}]_6^{6-}$

1. Kevin R. J. Lovelock, *R. Soc. Open Sci.* **2017**, 4 (12), 171223.
2. Y. Martinetto, B. Pégot, C. Roch-Marchal, M. Haouas, B. Cottyn-Boitte, F. Camerel, J. Jeftic, D. Morineau, E. Magnier, S. Floquet, *New J. Chem.* **2021**, 45 (22), 9751–9755.
3. S. Sarman, Y. L. Wang, P. Rohlmann, S. Glavatskih, S. A. Laaksonen, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2018**, 20 (15), 10193–10203.

## Representació cel·lular amb CORDA integrant dades experimentals

**Núria Aleixandre<sup>a,b</sup>; Sergi Pujol-Rigol<sup>a,b</sup>; David López-Blanco<sup>b</sup>, Silvia Marin<sup>b</sup>; Miriam Tarrado-Castellarnaub<sup>b</sup>; Pedro de Atauri<sup>c,de</sup>, Francesc Mas<sup>a,b</sup>, Sergio Madurga<sup>a,b</sup>, Marta Cascante<sup>c,d,e</sup>**

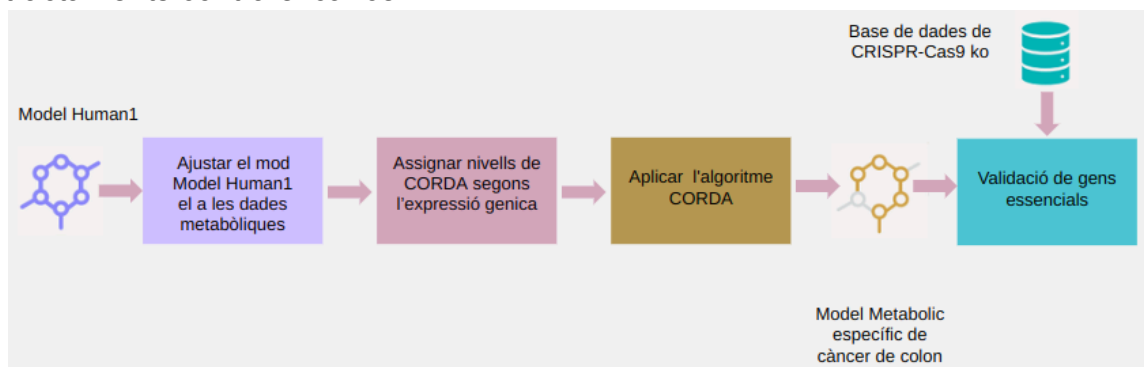
a, Universitat de Barcelona, Departament de Ciència de Materials i Química Física i IQTCUB, Barcelona 08028, Espanya.

b, Universitat de Barcelona, Departament de Bioquímica i Biomedicina Molecular i IBUB, Barcelona 08028, Espanya.

El metabolisme cel·lular comprèn una xarxa complexa de reaccions químiques i té la finalitat de proporcionar l'energia i els components bàsics necessaris per a la proliferació cel·lular (síntesi de biomassa). Cada tipus cel·lular presenta particularitats pel que fa a la expressió de gens metabòlics que venen condicionades no només pel seu llinatge sinó també pel entorn (la composició del medi de cultiu cel·lular). Reconstruir els mapes de reaccions metabòliques a partir de dades experimentals ("òmiques"), i generar models de la distribució de fluxos metabòlics a escala genòmica (GSMs), és clau per entendre el funcionament cel·lular, investigar malalties i dissenyar noves teràpies.

En aquest estudi, es simula el metabolisme de línies cel·lulars de càncer colorectal mitjançant un GSSM [1], utilitzant dades experimentals com a eina clau per aprofundir en la comprensió del funcionament cel·lular.

Per reconstruir el metabolisme de les línies cel·lulars de càncer colorectal, s'ha utilitzat un flux de treball basat en el model metabòlic Human1 [2], implementat en l'entorn COBRAPy, conjuntament amb l'algoritme CORDA. Aquest flux de treball permet la simulació de models GSSM, integrant dades metabòliques experimentals per identificar gens essencials per a la viabilitat cel·lular[3]. Mitjançant simulacions d'inhibició, on es modifiquen les reaccions associades a aquests gens, s'analitza l'impacte sobre la síntesi de biomassa, un indicador clau de la capacitat de proliferació cel·lular. La llista de gens essencials obtinguda s'ha validat comparant-la amb dades experimentals de "gene knockout", generades mitjançant la tècnica "CRISPR-Cas9", disponibles en bases de dades públiques. Aquest enfocament proporciona una visió detallada del metabolisme de càncer colorectal, amb aplicacions potencials per al disseny de teràpies personalitzades i l'optimització de tractaments contra el càncer.



1. S. Sánchez-García, A. Povo-Retana, et al., *Advanced Healthcare Materials* 2024, 2401688.
2. J.L. Robinson, P. Kocabaş, et al., *Science signaling* 2020, 13.
3. J. Tarragó-Celada, C. Foguet, et al., *Cancers* 2021, 13, 425.

## Estudis DFT sobre el Mecanisme de la Fotocatàlisi de la Difuncionalització d'Alquens en Absència de Metalls

Ana Guimarães,<sup>a</sup> Nath Aritra,<sup>b</sup> Rakesh Maiti,<sup>b</sup> Shoubhik Das,<sup>b</sup> Feliu Maseras,<sup>a</sup>

*a, Institute of Chemical Research of Catalonia (ICIQ-CERCA), The Barcelona Institute of Science and Technology, Tarragona, Spain.*

*b, Universität Bayreuth, Department of Organic Chemistry, Bayreuth, Germany.*

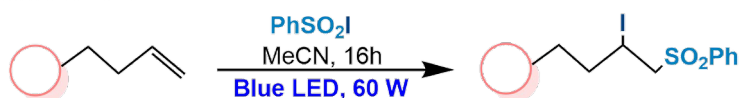
*aguimaraes@iciq.es*

La difuncionalització d'alquens és un procediment formalment senzill per a la construcció de molècules estructuralment complexes amb grups reactius versàtils. Tot i que s'han desenvolupat nombroses estratègies de difuncionalització, la majoria d'elles depenen de la catàlisi per metalls de transició.

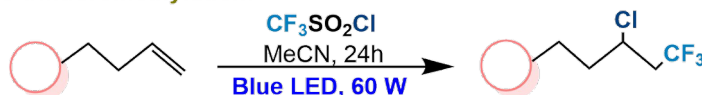
El grup experimental del Prof. Das, amb qui col·laborem, ha proposat un mètode fotocàtic sense participació de metalls, que es mostra en la Figura 1. La nostra estratègia aprofita les propietats úniques dels compostos sulfonítics, que poden ser excitats directament o formar un complex d'acceptor-donador d'electrons (EDA) amb el substrat.

En aquesta comunicació s'estudien les particularitats mecanístiques del sistema amb càlculs DFT i TD-DFT. El mecanisme calculat revela la formació d'espècies *a capa oberta*, incloent intermedis triplets i radicals, que faciliten la doble funcionalització selectiva. S'arriba a racionalitzar de manera satisfactòria la reactivitat en funció del substrat orgànic i de la molècula sulfonílica.

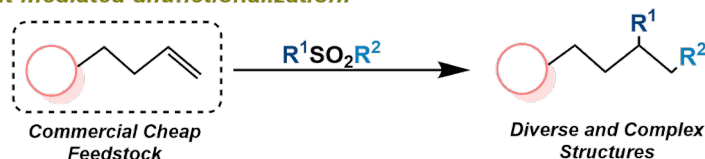
### Iodo sulfonation:



### Chloro trifluoromethylation:



### Light-mediated difunctionalization:



**Figura 1.** Fotocatàlisi de la difuncionalització d'alquens en absència de metalls.



## Modelització computacional de tasques metabòliques amb GSMM en línies cel·lulars de càncer colorectal

Sergi Pujol-Rigol<sup>a,b</sup>; Núria Aleixandre<sup>a,b</sup>; David López-Blanco<sup>b</sup>; Silvia Marin<sup>b</sup>; Míriam Tarrado-Castellarnau<sup>b</sup>; Pedro de Atauri<sup>b</sup>; Francesc Mas<sup>a</sup>; Sergio Madurga<sup>a</sup>; Marta Cascante<sup>b</sup>

*a, Universitat de Barcelona, Departament de Ciència de Materials i Química Física i IQTCUB, Barcelona 08028, Espanya.*

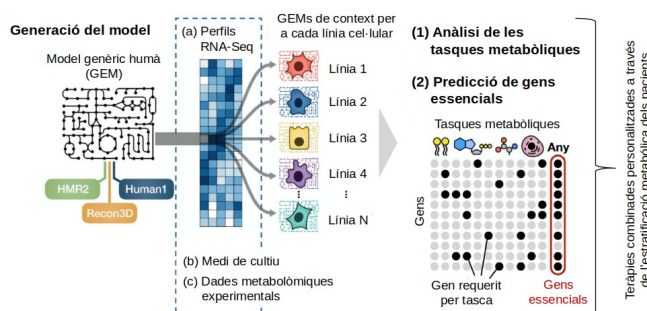
*b, Universitat de Barcelona, Departament de Bioquímica i Biomedicina Molecular i IBUB, Barcelona 08028, Espanya.*

*spujolri00@gmail.com*

L'heterogeneïtat metabòlica del càncer colorectal (CRC) és clau per entendre la diversitat de mecanismes de creixement i resistència tumoral, però la seva complexitat requereix l'ús dels Models Metabòlics a Escala Genòmica (GSMM) [1]. Partint d'un model complet de la xarxa metabòlica com Recon3D de BIGG Models o Human1 [2], es construeixen models de context específic basats en dades òmiques de CRC per a cada tipus de tumor i línia cel·lular.

L'objectiu principal d'aquest treball és caracteritzar les diferències a nivell metabòlic d'un conjunt de línies cel·lulars de CRC, mitjançant l'anàlisi de la seva capacitat per completar un conjunt de tasques metabòliques definides al model Human1 (e.g., fosforilació oxidativa, síntesi de novo de lípids o absorció d'aminoàcids). Aquest fenotipat permet entendre com es reorganitzen les xarxes metabòliques en el context del tumor, identificant patrons diferencials en funció del tipus de línia cel·lular. En paral·lel, s'estudien els gens metabòlics essencials per a la proliferació cel·lular [3] i els gens imprescindibles per a dur a terme cada tasca metabòlica [2]. Els gens coincidents ofereixen informació addicional per determinar les tasques metabòliques imprescindibles per cada línia cel·lular amb la finalitat de dissenyar teràpies combinades òptimes dirigides a impedir la reprogramació metabòlica.

La identificació de les principals diferències en la reprogramació metabòlica entre línies cel·lulars de CRC permetrà definir diferents subtipus metabòlics segons la seva capacitat de realitzar diferents tasques metabòliques i les seves vulnerabilitats a nivell de gens metabòlics.



Esquema adaptat de Robinson et al. (2020)

1. S. Sánchez-García, A. Povo-Retana, et al., *Advanced Healthcare Materials* **2024**, 2401688.
2. J.L. Robinson, P. Kocabaş, et al., *Science signaling* **2020**, 13.
3. J. Tarragó-Celada, C. Foguet, et al., *Cancers* **2021**, 13, 425.

## Tractament teòric de polieletròlits polifuncionals amb interaccions electrostàtiques fins a segons veïns

Javier Orradre<sup>a,\*</sup>, Pablo M. Blanco<sup>b</sup>, Sergio Madurga<sup>a</sup>, Francesc Mas<sup>a</sup>,  
Josep Lluís Garcés<sup>c</sup>

a) Universitat de Barcelona (UB), Facultat de Química, Departament de Ciència de Materials i Química Física & IQTC, Barcelona, Catalunya (Espanya).

b) Universitat Noruega de Ciència i Tecnologia (NTNU), Facultat de Ciències Naturals, Departament de Física, Trondheim (Noruega).

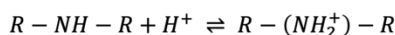
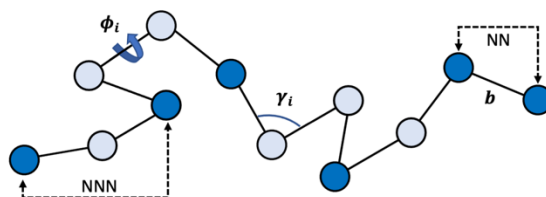
c) Universitat de Lleida (UdL), Facultat de Ciències, Departament de Química, Física i Ciències del Sòl i Medi Ambient, Lleida, Catalunya (Espanya).

\*E-mail: j.orradre@ub.edu

Els polieletròlits són macromolècules amb gran rellevància en camps com la biotecnologia, la química de materials i les ciències ambientals, gràcies a la seva capacitat d'interacció amb ions i molècules carregades. Malgrat això, la complexitat de les interaccions electrostàtiques i les propietats intrínseques de les cadenes polimèriques fan que sigui difícil modelar-los de manera rigorosa i tractable. En aquest treball es presenta un model teòric simple de polieletròlit que es basa en un conjunt de *sites* distribuïts al llarg d'una cadena lineal. Aquests *sites* poden tenir caràcter àcid o bàsic i presentar càrregues multivalents, oferint una representació versàtil de les cadenes polimèriques reals.

El model considera interaccions electrostàtiques a primers i segons veïns, incorporant així efectes de curt abast que sovint són crucials en sistemes reals. Una característica destacable del model és que admet una solució explícita, fet que permet una anàlisi detallada del comportament del sistema sense necessitat de fer simulacions numèriques costoses. Aquest avantatge facilita l'exploració de propietats d'equilibri, com el grau de protonació o la *end-to-end distance*, sota condicions fisicoquímiques diverses (pH, força iònica, etc.).

Aquest model contribueix significativament a la comprensió dels polieletròlits, proporcionant una eina simplificada però rigorosa per analitzar el paper de la càrrega, la seqüència segons el tipus de *sites* i les interaccions locals en el comportament macroscòpic. Addicionalment, aquest treball estableix una base sòlida per a futures extensions, incorporant fenòmens més complexos com les interaccions amb ions en solució o les interaccions a llarg abast.



1. J. Orradre, et al., *ArXiv eprint-2406.03991* **2024**.

## **Molecular Glues en el disseny de fàrmacs: millorant l'estabilitat de les interaccions proteïna-proteïna per a teràpies innovadores contra el càncer**

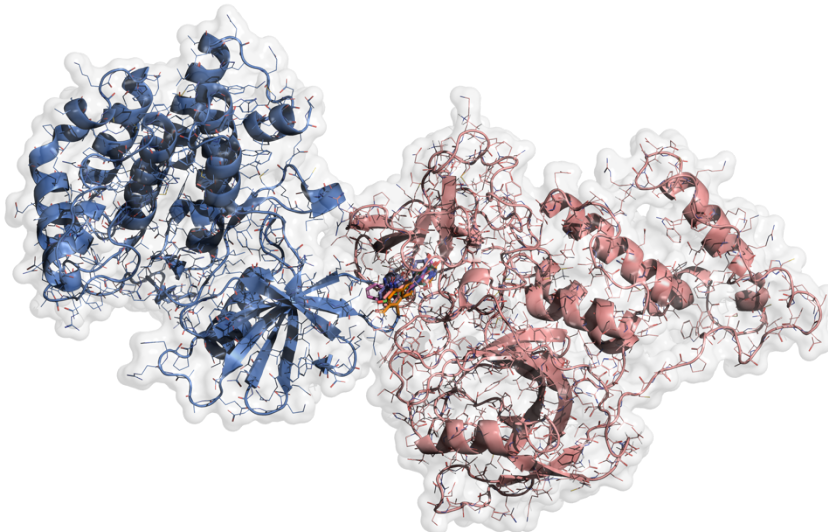
Blanca Díaz Canals,<sup>a,b</sup> Jordi Juárez-Jiménez,<sup>a,b</sup>

*a, Universitat de Barcelona, Departament de Físicoquímica, Facultat de Farmàcia, Barcelona, Espanya.*

*b, Institut de Química Teòrica i Computacional (IQTC), Barcelona, Espanya.*

*e-mail: blanca.diaz@ub.edu*

Els *molecular glues* (MG) o, en català, coles moleculars podrien representar un canvi de paradigma en els camps de la química medicinal i el disseny de fàrmacs. Tanmateix, per aprofitar plenament el potencial terapèutic d'aquests, és fonamental comprendre el seu paper en l'estabilitat de la interfície proteïna-proteïna. En línia amb el compromís del nostre grup d'avançar en eines computacionals per a objectius terapèutics complexos, dirigim els nostres esforços a desxifrar els principis físicoquímics que regeixen aquestes interaccions. El nostre objectiu és integrar aquests principis en noves eines computacionals per identificar petites molècules que excel·leixin en l'estabilització de complexos ternaris.



El nostre cas de prova és l'E3 ligasa Cereblon (CRBN), que és una peça essencial en els esforços actuals per generalitzar l'enfocament de la degradació dirigida de proteïnes (*Targeted Protein Degradation*). A la tesi, faig èmfasi en descobrir petites molècules capaces d'induir la degradació de proteïnes sobreexpressades en el càncer, oferint una via prometedora per a estratègies innovadores contra el càncer. Aquest projecte es basa en els resultats d'un article (1) que mostra que la lenalidomida estabilitza el complex proteïna-proteïna entre cereblon i CK1a augmentant la força dels ponts d'hidrogen entre les proteïnes.

1. M. Miñarro-Lleonar, A. Bertran-Mostazo, J. Duro, X. Barril, J. Juárez-Jiménez, *J. Med. Chem.* 2023, 66, 6037–6046.

## Millorant el mostreig conformacional de complexos proteïna-fragment amb el mètode *fragment dissolved Molecular Dynamics* (fdMD)

Maria Nuria Peralta,<sup>a</sup> Alex Rodriguez,<sup>b</sup> Rocío Mercado Oropeza,<sup>c</sup> José Manuel Granadino,<sup>d</sup> Jaime Rubio<sup>a</sup>

*a, Universitat de Barcelona, Departament de Ciència de Materials i Química Física i Institut de Química Teòrica i Computacional (IQTC-UB), Barcelona, Espanya.*

*b, Università degli Studi di Trieste, Dipartimento di Matematica e Geoscienze, Trieste, Itàlia.*

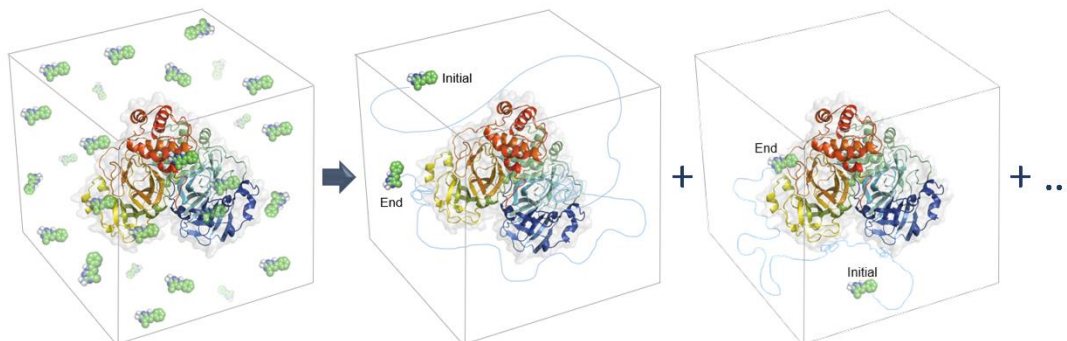
*c, Department of Computer Science and Engineering, Chalmers University of Technology, Göteborg, Suècia.*

*c, Universidad de Jaén, Departamento de Química Física y Analítica, Jaén, Espanya.*

[peralta.mnuria@ub.edu](mailto:peralta.mnuria@ub.edu)

El *fragment dissolved Molecular Dynamics* (fdMD), que va aparèixer al 2021 com a resposta a la creixent importància del disseny de fàrmacs basat en fragments, consisteix en la realització de múltiples dinàmiques moleculars que inclouen múltiples còpies del mateix fragment amb l'objectiu d'incrementar el mostreig de la superfície de la proteïna diana. D'aquesta manera es facilita la identificació i selecció dels llocs d'unió més significatius. [1]

L'aparició de falsos positius poden dificultar la identificació del lloc d'unió més favorable dels complexos proteïna-fragment. Per altra banda, fragments amb baixa afinitat poden presentar esdeveniments recurrents d'associació/dissociació que fan necessàries altres estratègies d'anàlisi. Mitjançant la introducció de diferents tècniques com per exemple l'ús de dinàmica molecular accelerada o *Machine Learning* (ML), s'ha aconseguit reduir l'impacte d'aquests problemes i ha permès la identificació unívoca dels modes d'unió sense l'ús de cap informació experimental prèvia.



**Figura 1:** Múltiples trajectòries individuals obtingudes a partir d'una dinàmica molecular de fragments dissolts (fdMD).

1. C. Privat, J. M. Granadino, J. Bonet, M. Santos, J. J. Perez, J. Rubio *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2021**, *23*, 3123-3134.

## Explorant la dinàmica evolutiva entre ortòlegs de GPX6 i comparant-ne l'eficiència catalítica mitjançant càlculs d'enllaç de valència empírics (EVB)

Nayanika Das<sup>1</sup>, Vijay Baladhya<sup>3</sup>, Jordi Villà-Freixa<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Computational Biochemistry and Biophysics Lab (CBBL); Research Group on Bioinformatics and Bioimaging (BI2); Facultat de Ciències, Tecnologia i Enginyeries; Universitat de Vic – Universitat Central de Catalunya (UVic-UCC), Vic, Barcelona

<sup>2</sup> Institut de Recerca i Innovació en Ciències de la Vida i de la Salut a la Catalunya Central (IRIS-CC)

<sup>3</sup> Bioinformatics Centre, Savitribai Phule Pune University, Índia

Hi ha una transició evolutiva a la família de proteïnes glutatió peroxidasa (GPX) des de seqüències que contenen Sec a seqüències que contenen Cys. Els resultats experimentals anteriors mostren que diverses estructures ancestrals GPX6 reconstruïdes recuperen l'activitat de la peroxidasa quan el lloc actiu es muta de Cys a Sec [1]. En aquest treball, pretenem estudiar les interaccions epistàtiques associades a variacions d'aminoàcids que podrien explicar la presència o absència d'activitat peroxidasa. Hem desenvolupat un model d'enllaç de valència empírica (EVB) utilitzant estructures de ratolí GPX6Cys (PDB ID: 7fc2) [3] i GPX6Sec humà (AlphaFold2) [2], basat en el mecanisme proposat. El programa Q6 [4] es va utilitzar per als càlculs EVB/FEP. Aquest enfocament ens permet explorar la influència de les variacions filogenètiques en l'activitat catalítica i intentar proposar vies mutacionals raonables. La flexibilitat de residus (RMSF) va revelar àmplies similituds entre el ratolí i l'ésser humà, amb residus específics que presentaven diferències en flexibilitat i estabilitat. Les simulacions preliminars d'EVB donen suport a la nostra hipòtesi, destacant la barrera energètica més baixa associada al sistema que conté selenocisteïna, d'acord amb la seva eficiència catalítica millorada. Aleshores vam començar a investigar la via evolutiva que uneix la seqüència, l'estructura i el ratolí de GPX6 humà. El nostre objectiu és explorar el paisatge evolutiu que hipotèticament connectaria aquestes dues proteïnes mitjançant l'anàlisi de barreres d'energia lliure. Per aconseguir-ho, utilitzem un algorisme cobdició dissenyat per minimitzar el nombre de càlculs EVB. Tot i que aquesta investigació està en curs, proporciona coneixements valuosos sobre la dinàmica estructural i funcional alhora que estableix les bases per als protocols de disseny d'enzims computacionals que s'estenen a altres sistemes enzimàtics. Les dades i el codi utilitzats aquí estan disponibles a github.

Paraules clau - glutathione peroxidase, catalytic activity, evolution, epistasis, EVB

### Referències

1. Rees J, Sarangi G, Cheng Q, Floor M, Andrés AM, Oliva Miguel B, Villà-Freixa J, Arnér ESJ, Castellano S. Ancient Loss of Catalytic Selenocysteine Spurred Convergent Adaptation in a Mammalian Oxidoreductase. *Genome Biol Evol.* 2024 Mar 2;16(3):evae041. doi: 10.1093/gbe/evae041. PMID: 38447079; PMCID: PMC10958145.
2. Jumper J, Evans R, Pritzel A, Green T, Figurnov M, Ronneberger O, Tunyasuvunakool K, Bates R, Žídek A, Potapenko A, Bridgland A, Meyer C, Kohl SAA, Ballard AJ, Cowie A, Romera-Paredes B, Nikolov S, Jain R, Adler J, Back T, Petersen S, Reiman D, Clancy E, Zielinski M, Steinegger M, Pacholska M, Berghammer T, Bodenstein S, Silver D, Vinyals O, Senior AW, Kavukcuoglu K, Kohli P, Hassabis D. Highly accurate protein structure prediction with AlphaFold. *Nature.* 2021 Aug;596(7873):583-589. doi: 10.1038/s41586-021-03819-2. Epub 2021 Jul 15. PMID: 34265844; PMCID: PMC8371605.
3. <https://www.rcsb.org/structure/7FC2>
4. Q6: A comprehensive toolkit for empirical valence bond and related free energy calculations  
Bauer, Paul et al. *SoftwareX*, Volume 7, 388 - 395. 2018

## Més enllà de la gestió de dades de química computacional

Moisés Álvarez, Jair Wells, Marc Gruber, Carles Bo,<sup>a</sup>

*a. Institut Català d'Investigació Química, Tarragona, Espanya.  
contact@iochem-bd.org*

ioChem-BD és un repositori de dades de química computacional i ciència de materials que permet als usuaris emmagatzemar, compartir i publicar els resultats de la seva investigació. La plataforma es regeix pels principis FAIR de dades obertes, permetent a la comunitat científica trobar, accedir, operar i reutilitzar les dades amb facilitat. No obstant, el programari no és limita a la simple gestió de dades.

Al pujar-hi els fitxers, aquests són convertits al format unificat CML, permetent als investigadors accedir a les diferents dades en informes d'estructura simple i ordenada sigui quin sigui el programari de simulació d'origen (*VASP*, *Gaussian*, etc.). Es podran generar imatges que els permetin visualitzar les energies de transició dels seus compostos, els orbitals moleculars o espectres IR, a més de poder crear gràfiques de reacció pròpies o realitzar càlculs avançats fent servir *python* en una llibreta de *Jupyter*.

En definitiva, els investigadors amb un compte gratuït podran accedir a multitud d'eines de treball diari que els ajudaran en diferents etapes de la producció i publicació de resultats. Adicionalment, el projecte OSCARS 2025-2026 facilitarà l'ús de la plataforma a tota la comunitat acadèmica.

1. M. Álvarez-Moreno, C. de Graaf, J. Chem. Inf. Model. 2015, 55, 1, 95–103.

# COMITÈ ORGANITZADOR de la 2a REUNIÓ de QUÍMICA TEÒRICA I COMPUTACIONAL



Mercè Deumal (UB) – Chair  
Maria Besora (URV) – Co-chair  
Vicent Moliner (UJI)  
Silvia Osuna (UdG)  
Toni Frontera (UIB)  
Xevi Biarnés (IQS)  
Josep Lluís Garcés (UdL)  
Gregori Ujaque (UAB)

**Amb el suport de:**



UNIVERSITAT DE  
BARCELONA

Facultat de Química



ioChem-BD



SCM

