

mgr inż. Karolina Maria Bachosz
Politechnika Poznańska
Wydział Technologii Chemicznej

Streszczenie rozprawy doktorskiej

„Reaktywna konwersja składników biomasy z równoczesną regeneracją kofaktora enzymatycznego”

Promotor rozprawy doktorskiej: prof. dr hab. inż. Teofil Jesionowski

Promotor pomocniczy: dr hab. inż. Jakub Zdarta

W związku z wyczerpującymi się zasobami naturalnymi stale rośnie zainteresowanie wykorzystaniem biomasy jako alternatywnego surowca wyjściowego do produkcji szerokiej gamy chemikaliów. Ksyloza i glukoza, będące produktami konwersji lignocelulozy, mogą ulegać reakcjom katalizowanym enzymatycznie, których efektem jest powstanie związków chemicznych o dużym potencjale aplikacyjnym. Jednak praktyczne zastosowanie układów enzymatycznych w procesach związanych z konwersją biomasy wiąże się z szeregiem niedogodności, tj. szybka utrata aktywności katalitycznej, niska stabilność mechaniczna lub ograniczona możliwość ponownego użycia, a także konieczność stosowania kofaktorów enzymatycznych, które są związkami niezbędnymi do osiągnięcia wysokiej aktywności katalitycznej białek. Jednym z możliwych rozwiązań wspomnianych powyżej problemów jest zastosowanie procesu koimmobilizacji enzymów, dobranych w taki sposób, aby katalizowane przez nie reakcje mogły równocześnie zostać wykorzystane do konwersji składników biomasy oraz regeneracji kofaktorów enzymatycznych. Opracowanie takiego systemu biokatalitycznego może wpłynąć na poprawę stabilności układu, a także ułatwić jego ponowne wykorzystanie w kolejnych cyklach reakcyjnych. Dlatego też postanowiono przeprowadzić badania związane z opracowaniem układów koimmobilizowanych enzymów umożliwiających jednoczesną konwersję biomasy i regenerację kofaktorów enzymatycznych. Opracowanie wydajnych systemów biokatalitycznych obejmowało określenie najkorzystniejszych warunków prowadzenia koimmobilizacji enzymów, jak również analizę fizykochemiczną otrzymanych systemów. Ponadto istotną częścią badań było efektywne zastosowanie uzyskanych układów biokatalitycznych w procesach biokonwersji i regeneracji kofaktorów oraz wyodrębnienie finalnego produktu z mieszaniny poreakcyjnej z wykorzystaniem enzymatycznego reaktora membranowego.

W części teoretycznej przedkładanej pracy doktorskiej zaprezentowano przegląd literatury, który miał na celu przybliżenie najważniejszych zagadnień związanych z tematyką realizowanych badań. Opisano obróbkę wstępną oraz konwersję biomasy lignocelulozowej, ze szczególnym uwzględnieniem enzymatycznych metod przetwarzania celulozy i hemicelulozy oraz potencjału aplikacyjnego powstających produktów. Następnie przedstawiono podstawy doboru materiału nośnika, jak również metody immobilizacji białek, a dodatkowo zwrócono uwagę na możliwości użytkowe materiałów krzemionkowych oraz zastosowanie enzymatycznych reaktorów membranowych. Co więcej, omówiono także zalety i wady koimmobilizacji enzymów. Ponadto opisano ograniczenia związane z koniecznością stosowania biokatalizatorów zależnych od kofaktorów oraz finalnie omówione zostały metody regeneracji kofaktorów, a także wskazano możliwości rozwoju systemów multienzymatycznych w recyklingu tych związków.

W ramach pracy doktorskiej przedstawiono wyniki badań oraz ich dyskusję, których podstawą jest pięć oryginalnych publikacji naukowych stanowiących monotematycznych cykl prac. W trakcie realizacji badań opracowano systemy biokatalityczne zdolne do prowadzenia procesów biokonwersji ksylozy i/lub glukozy z równoczesną regeneracją kofaktora nikotynoamidoadeninowego z wykorzystaniem koimmobilizowanych na różnych materiałach ($\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2$, krzemionka SBA-15,

membrana nanofiltracyjna) dehydrogenazy ksylozy i/lub dehydrogenazy glukozy z enzymem regenerującym (dehydrogenaza alkoholowa lub dehydrogenaza 3-hydroksymaślanowa), a następnie dokonano rozdzielenia składników mieszaniny poreakcyjnej za pomocą technik membranowych. W trakcie prowadzonych prac zdefiniowano parametry kinetyczne enzymów i określono wpływ warunków procesowych (temperatura, pH, stosunek enzymów, stosunek kofaktorów, stosunek substratów, rodzaj buforu, obecność inhibitorów) na efektywność wspomnianych systemów biokatalitycznych. Dodatkowo ocenie poddano potencjał aplikacyjny opracowanych układów poprzez testy możliwości ich ponownego zastosowania w kolejnych cyklach reakcyjnych oraz zdefiniowano ich stabilność podczas przechowywania. W ramach prezentowanych badań skutecznie wydzielono także główne produkty końcowe z mieszaniny reakcyjnej oraz potwierdzono efektywność regeneracji kofaktorów enzymatycznych. Każdy z opracowanych systemów biokatalitycznych poddano zaawansowanej ocenie fizykochemicznej z wykorzystaniem takich technik jak: skaningowa mikroskopia elektronowa (SEM), transmisyjna mikroskopia elektronowa (TEM), energodispersyjna mikroanaliza rentgenowska (EDS), spektroskopia w podczerwieni z transformacją Fouriera (FTIR) oraz spektroskopia UV-Vis. Ponadto w celu określenia efektywności prowadzonych reakcji przeprowadzono analizę jakościową i ilościową z użyciem chromatografii gazowej sprzężonej ze spektrometrią mas.

Przedstawione rezultaty oraz opisane zależności, będące podstawą dysertacji doktorskiej, umożliwiły potwierdzenie postawionej hipotezy badawczej oraz udowodniły osiągnięcie założonego celu badań. Uzyskane dane pozwoliły na określenie potencjału opracowanych systemów biokatalitycznych z koimmobilizowanymi enzymami w procesach konwersji składników biomasy z równoczesną regeneracją kofaktora enzymatycznego. Wnioski wyciągnięte z przeprowadzonych badań wskazują, że podjęta tematyka badawcza jest niezwykle aktualna i istotna dla dalszego rozwoju nauk chemicznych, a w szczególności biotechnologii i biokatalizy.

.....
data i podpis autora