

Extinderea domeniului de aplicabilitate a Biocatalizei

Sisteme enzimatic pentru valorificarea surselor de carbon regenerabile/residuale

Rezumat

Teza de abilitare prezintă realizările profesionale (academice și de cercetare științifică) ale candidatei în urma activității didactice și de cercetare desfășurată în perioada 2006-prezent (ulterior dobândirii titlului de doctor în Chimie – septembrie 2005) în cadrul Facultății de Chimie, Universitatea din București, domeniul de interes fiind CHIMIE, cu preponderență Biocataliză în contextul Chimiei Verzi.

Teza este organizată sub forma a două secțiuni: secțiunea A dedicată realizărilor profesionale prezentate documentat în contextul general al domeniului de specialitate al candidate și secțiunea B constituită din planul de evoluție și dezvoltare al carierei profesionale (academice și de cercetare științifică) al candidatei.

Activitatea de cercetare care stă la baza tezei s-a desfășurat cu preponderență în aria Biocatalizei, cu scopul general de a realiza sisteme biocatalitice care să utilizeze surse de carbon regenerabile/reziduale. Biocataliza este un domeniu cu tradiție însumând procese fermentative atestate din vremuri preistorice (aprox. 7000 ÎC) și culminând în prezent cu procese enzimatic de interes industrial (ex. proces în cascadă pentru sinteza Islatravir, cu acțiune terapeutică HIV, producător Codexis-Merck). Astfel, putem menționa o paletă variată de domenii care utilizează cu succes metode biocatalitice (medicină, analize clinice, industrie farmaceutică, etc).

Pentru domeniul Chimie, biocataliza oferă soluții în construirea unei chimii verzi, sustenabile, bazată pe recircularea carbonului ca sursă în sinteza compușilor de interes la nivel industrial. Sistemele biocatalitice cu catalizator enzimatic sunt considerate reprezentative, oferind eficiență în reacția chimică (regio/stereo-selectivitate) și eliminând eventuale aspecte care dezavantajează sintezele organice în contextul poluării mediului înconjurător. Astfel, avantajele biocatalizei sunt: toxicitate redusă a reactanților, biodegradabilitate catalizatori, consum minim pentru materiale și energie, costuri reduse pentru etapele de separare și purificare ale produșilor. Biocatalizatorii enzimatici de tip lipază, peroxidază și catalază sunt menționați explicit în cadrul tezei, aceste enzime constituind biocatalizatori ai sistemelor realizate în cadrul activitatea de cercetare științifică considerată.

Imobilizarea enzimelor de interes și evaluarea activității lor catalitice sunt detaliate în cadrul tezei. Metodele de imobilizare considerate sunt: imobilizare covalentă, reticulare

(CLEA/CLEMPA) și entrapare. Studiul comparativ al biocatalizatorilor rezultați în urma imobilizării enzimei, considerând enzima de tip lipază, evidențiază avantajele/dezavantajele fiecărei alternative de imobilizare. În general, toate metodele de imobilizare oferă posibilitatea reutilizării biocatalizatorilor, diferențierea constând în capacitatea acestora de a-și păstra activitatea catalitică (activitatea catalitică reziduală). Este de menționat că utilizarea suportului de tip nano/micro-particulă magnetică facilitează manipularea biocompozitelor enzimă-suport în mediul de reacție și, în unele cazuri, asigură o activitate reziduală mare. Diametrul particulei, structura suprafeței expusă imobilizării, cât și procedura de activare chimică a acestei suprafețe sunt aspecte care influențează caracteristicile biocompozitelor. Pentru biocompozitele obținute prin entraparea enzimei de tip lipază, testele biocatalitice realizate au evidențiat o activitate catalitică duală în biotransformarea oxidativă a α -pinenului, implicând atât enzima imobilizată, cât și suprafața suportului (de tip polizaharidă – alginat sau caraginan). Datele experimentale prezentate în cadrul tezei susțin toate aceste observații.

În cadrul tezei, un spațiu amplu este acordat descrierii sistemelor biocatalitice realizate de candidată pentru valorificarea surselor de biomasă (ex. plante oleaginoase pentru ulei vegetal, lignină, masă vegetală pentru terpene, etc.) și a surselor reziduale de tip mase plastice (ex. PET). Toate aceste sisteme sunt prezentate în contextul cercetării științifice actuale, pentru a evidenția originalitatea și importanța lor. Un prim sistem biocatalitic construit a fost dedicat valorificării glicerolului provenit din industria Biodiesel. Glicerolul a constituit precursor pentru obținerea glicerol carbonatului, proces catalizat de biocatalizator de tip lipază. Optimizarea procesului biocatalitic a permis aplicarea metodei cu succes pentru glicerol crud (proba din procesul biodiesel fara etapa de pretratare). S-a realizat un studiu detaliat al efectului de matrice în cazul glicerolului crud. Acest studiu a evidențiat robustețea sistemului biocatalitic dezvoltat. O altă aplicație a biocatalizei prezentată în cadrul tezei a avut drept țintă valorificarea ligninei. În acest caz, sistemele biocatalitice realizate au permis atât producerea unor structuri ligno-polimerice pornind de la precursori de tip monolignoli, cât și derivatizarea/grefarea ligninei naturale cu noi grupări funcționale (ex. $-NH_2$, $-CH_3$) care să ofere noilor structuri ligninice proprietăți controlate/impuse. Alte sisteme biocatalitice prezentate în teză, care sunt dedicate biotransformării compușilor proveniți din biomasă sunt: sistem biocatalitic cu lipază extremofilă de tip “cold-active” pentru acilarea silibinului A/B, compus dominant în compoziția silimarinei (extract din *Silybum marianum*), sistem biocatalitic pentru oxidarea enzimatică a compușilor terpenoidici (ex. α -pinen) și sistem enzimatic pentru epoxidarea uleiurilor uzate cu conținut rezidual de acizi grași nesaturați.

O altă direcție de cercetare a candidatei s-a materializat în realizarea unui sistem biocatalitic pentru modelarea chimică a fragmentelor provenite de la degradarea PET-urilor (polietilen tereftalați). În acest caz, a fost considerată moleculă model BHET (bis-hidroxietyl tereftalat). Sistemul biocatalitic realizat pe baza reacției de transesterificare a BHET cu DMC (dimetil carbonat) în prezența lipazei din *Aspegillus niger* a permis obținerea selectivă a TPA (acidul tereftalic), cât și a MTP (metil ester provenit de la acidul tereftalic), compuși cu potențial pentru industria polimerilor. Astfel, sistemul biocatalitic realizat oferă o perspectivă promițătoare pentru reciclarea PET-urilor, aspect de interes în contextul sănătății mediului înconjurător.

Secțiunea B a tezei cuprinde planul de dezvoltare a carierei profesionale (academice și științifice) a candidatei. Din punct de vedere al cercetării științifice, sunt indicate direcții de orientare a activității candidatei. Acestea constituie acțiuni de continuare a unor teme deja aflate în studiu (ex. derivatizarea silibinului A/B, lignina ca aditiv pentru bitum, ridicarea la scală industrială a producerii pirazinelor). Totodată, sunt propuse noi teme de interes (ex. curățarea foto-bio-catalitică a reziduurilor lignocelulozice, producerea derivaților acidului cinamic cu proprietăți terapeutice și noi biocatalizatori enzimatici pentru fragmentarea PET-urilor), în concordanță cu tendințele actuale ale cercetării la nivel global. Identificarea și accesarea surselor financiare pentru susținerea activității de cercetare constituie aspecte cheie în planul de dezvoltare propus. Totodată, candidata propune dezvoltarea unor relații de colaborare cu eventuali beneficiari ai activității de cercetare, ca o altă alternativă de susținere a activității științifice. În plan academic, sunt menționate aspecte legate de activitatea didactică (ex. sunt considerate cursurile și lucrările practice de laborator din norma didactică), cât și cele specifice activității de supervizare la nivel de licență, master și doctorat (în urma dobândirii titlului de Abilitat).